

Temperaturabhängige elektronische Struktur und Magnetismus von metallischen Systemen mit lokalisierten Momenten: Anwendung auf Gadolinium

DISSERTATION

zur Erlangung des akademischen Grades
doctor rerum naturalium
(Dr. rer. nat.)
im Fach Physik

eingereicht an der
Mathematisch-Naturwissenschaftlichen Fakultät I
Humboldt-Universität zu Berlin

von
Herr Dipl.-Phys. Carlos Augusto Machamba dos Santos
geboren am 2. April 1967 in Mosambik

Präsident der Humboldt-Universität zu Berlin:
Prof. Thomas Buckhout, PhD

Dekan der Mathematisch-Naturwissenschaftlichen Fakultät I:
Prof. Dr. Jürgen Mlynek

Gutachter:

1. Priv.-Doz. Dr. Bernd Esser
2. Prof. Dr. Wolfgang Nolting
3. Priv.-Doz. Dr. Michael Potthoff

eingereicht am: 8. April 2005
Tag der mündlichen Prüfung: 24. Juni 2005

Abstract

This thesis focuses on the theoretical investigation of the temperature dependent electronic and magnetic properties of metallic 4f-systems with localized magnetic moments. The presented theory is based on the Kondo-lattice model, which describes the interaction between a system of 4f-localized magnetic moments and the itinerant conduction band electrons. This interaction is responsible for a remarkable temperature dependence of the electronic structure mainly induced by the subsystem of 4f-localized moments.

The many-body problem provoked by the Kondo-lattice model is solved by using a moment conserving Green function technique, which takes care of several special limiting cases. This method reproduces the $T = 0$ -exact solvable limiting case of the ferromagnetically saturated semiconductor.

The temperature dependent magnetic properties of the 4f-localized subsystem are evaluated by means of a modified Rudermann-Kittel-Kasuya-Yosida (RKKY) type procedure, which together with the solution of the electronic part allows for a self-consistent calculation of all the electronic and magnetic properties of the model. Results of model calculations allow to deduce the conditions for ferromagnetism in dependence of the electron density n , exchange coupling J and temperature T . The self-consistently calculated Curie temperature T_C is presented and discussed in dependence of relevant parameters (J , n , and W) of the model.

The second part of the thesis is concerned with the investigation of the temperature dependence of the electronic and magnetic properties of the rare-earth metal Gadolinium (Gd). The original Kondo-lattice model is extended to a multi-band Kondo-lattice model and combined with an *ab-initio* band structure calculation to take into account for the multi-bands in real systems. The single-particle energies of the model are taken from an *augmented spherical wave* (ASW) band structure calculation. The proposed method avoids the double counting of relevant interactions by exploiting the $T = 0$ -exact limiting case of the ferromagnetically saturated semiconductor and takes into account the correct symmetry of the atomic orbitals. The only parameter of the theory (inter-band exchange coupling J) is uniquely fixed by the band structure calculation.

The self-consistently derived Curie temperature of 294.1 K and the $T = 0$ -magnetic moment of $7.71 \mu_B$ are surprisingly close to the experimental values. The induced temperature-dependence of the 5d conduction bands explains respective experimental photoemission data.

Keywords:

Magnetism, Gadolinium, Kondo-lattice model, Bandstructure Calculations

Zusammenfassung

Diese Arbeit befaßt sich mit der theoretischen Untersuchung der temperaturabhängigen elektronischen und magnetischen Eigenschaften von metallischen 4f-Systemen mit lokalisierten magnetischen Momenten.

Die vorgestellte Theorie basiert auf dem Kondo-Gitter-Modell, das die Wechselwirkung der itineranten Leitungselektronen mit den lokalisierten 4f-Momenten beschreibt. Diese Wechselwirkung ist für die ausgeprägte Temperaturabhängigkeit der elektronischen Struktur, die vorwiegend vom Untersystem der lokalisierten 4f-Momente induziert wird, verantwortlich.

Das vom Kondo-Gitter-Modell verursachte Vielteilchenproblem wird mit Hilfe einer momentenerhaltenden Greenfunktionen-Methode, die mehrere spezielle, exakt lösbare Grenzfälle berücksichtigt, gelöst. Diese Methode reproduziert unter anderem den $T = 0$ -exakt lösbaren Grenzfall des ferromagnetisch gesättigten Halbleiters.

Die temperaturabhängigen magnetischen Eigenschaften des lokalisierten 4f-Systems werden im Rahmen einer modifizierten Rudermann-Kittel-Kasuya-Yosida-Wechselwirkung (RKKY) behandelt. Sie gestattet, zusammen mit der Lösung für das elektronische Teilsystem, eine selbstkonsistente Berechnung sowohl der elektronischen als auch der magnetischen Eigenschaften des Modells.

Die Ergebnisse der Modellrechnungen erlauben die Untersuchung der Bedingungen für das Auftreten von Ferromagnetismus in Abhängigkeit der Elektronendichte n , Austauschkonstanten J und Temperatur T . Die selbstkonsistent bestimmte Curie-Temperatur wird in Abhängigkeit von den wichtigsten Parametern des Modells (J , n und W) detailliert diskutiert.

Der zweite Teil dieser Dissertation befaßt sich mit der Berechnung der temperaturabhängigen elektronischen und magnetischen Eigenschaften des Seltenen-Erden Gadoliniums (Gd). Um dem Mehrbandcharakter eines realen Systems Rechnung zu tragen, wird das ursprüngliche Kondo-Gitter-Modell zu einem Mehrbandmodell erweitert und mit einer *ab-initio*-Bandstrukturechnung (ASW) kombiniert. Die im Modell auftretende Ein-Teilchen-Energie und die Austauschkonstante J werden der Bandstrukturechnung entnommen, wobei hier die Doppelzählung von relevanten Wechselwirkungen vermieden wird. Die selbstkonsistent ermittelte Curie-Temperatur von 294.1 K und das $T = 0$ -magnetische Moment von $7.71 \mu_B$ sind in exzellenter Übereinstimmung mit den experimentell gemessenen Daten. Die Temperaturabhängigkeit der Photoemissionsdaten werden mit Hilfe der vom 4f-System induzierten Temperaturabhängigkeit gedeutet.

Schlagwörter:

Magnetismus, Gadolinium, Kondo-Gitter Modell, Bandstrukturechnungen

Inhaltsverzeichnis

Abbildungsverzeichnis	vii
Tabellenverzeichnis	x
1 Einleitung	1
2 Modelle korrelierter Elektronen	6
2.1 Heisenberg-Modell	6
2.2 Hubbard-Modell	7
2.3 Kondo-Gitter-Modell	8
3 Elemente der Vielteilchentheorie	10
3.1 Greensche Funktionen	10
4 Ein-Band-Kondo-Gitter-Modell	15
4.1 Allgemeine Relationen	15
4.2 Exakte Resultate	20
4.2.1 Ferromagnetische Sättigung und $n = 0$	20
4.2.2 Der atomare Limes	25
4.3 Modellrechnungen	29
4.3.1 Elektronische Selbstenergie	29
4.3.2 Modifizierte RKKY-Wechselwirkung	32
4.4 Numerische Ergebnisse	38
4.4.1 Phasendiagramm	38
4.4.2 Elektronisches System	43
4.4.3 Das lokalisierte Spinsystem	46
5 Gadolinium	53
5.1 Experimenteller Hintergrund	53
5.2 Dichte-Funktional-Theorie	54
5.2.1 Die Lokale-Dichte-Näherung	57

5.2.2	Bandstrukturechnung	58
5.3	Mehr-Band-Kondo-Gitter-Modell	59
5.3.1	Modifizierte RKKY-Wechselwirkung	63
5.3.2	Kombination mit der ASW-Bandstruktur	64
5.4	Diskussion der Ergebnisse	66
A	Exakte Relationen	73
B	Fourier-Transformation	75
C	Elektronische Selbstenergie (MCDA)	77
D	Spektralmomente	84
E	Symmetrierelationen von $D_q^{\sigma\sigma'}$	86
F	Ferromagnetische Sättigung . . .	88
	Literaturverzeichnis	90

Abbildungsverzeichnis

4.1	\downarrow -Spektraldichte als Funktion der Energie für verschiedene Punkte in der Brillouin-Zone und verschiedene Kopplungskonstanten J . Parameter: $S = \frac{1}{2}$, $W = 1$ eV, einfach kubisches Gitter [1, 2, 3].	23
4.2	\downarrow -Spektraldichte (Quasiteilchen-Bandstruktur) für $S = \frac{1}{2}$, Bandbreite $W = 1$ eV und verschiedene effektive Kopplungen JS entlang der Hochsymmetrierichtungen in der ersten Brillouin-Zone. Linke Spalte für $J > 0$, rechte Spalte für $J < 0$ [1, 3].	24
4.3	Quasiteilchen-Zustandsdichte für $\sigma = \downarrow$ in Abhängigkeit von der Energie für verschiedene effektive Kopplungen JS . Parameter: $S = \frac{1}{2}$, $W = 1$ eV, einfach kubisches Gitter.	25
4.4	Korrelationsfunktion $\Delta_{i\sigma}^+$ in Abhängigkeit von der Kopplungskonstanten J für verschiedene Besetzungen n . Temperatur $T = 100$ K. Für die Magnetisierung haben wir $\langle S_i^z \rangle = 0$ angenommen.	28
4.5	Innere Energie U bei $T = 0$ K in Abhängigkeit von der Elektronendichte n für $J = 0.3$ eV, Spin $S = \frac{7}{2}$ und Bandbreite $W = 1$ eV.	38
4.6	Phasendiagramm des Ein-Band-Kondo-Gitter-Modells für $S = \frac{7}{2}$ und $W = 1$ eV. FM: ferromagnetisch stabiler Bereich.	39
4.7	Energiedifferenz in Abhängigkeit von der Elektronendichte n für verschiedene Kopplungskonstanten J . Weitere Parameter: $S = \frac{7}{2}$, $W = 1$ eV, einfach kubisches Gitter.	40
4.8	Links ist die kinetische Energie und rechts die potentielle Energie in Abhängigkeit von der Elektronendichte n für den paramagnetischen und ferromagnetischen Zustand dargestellt. Parameter: $J = 0.3$ eV, $W = 1$ eV, $S = \frac{7}{2}$	41
4.9	Wie in Abbildung 4.8. Parameter: $J = 0.1$ eV, $W = 1$ eV und $S = \frac{7}{2}$	41
4.10	Energiedifferenz als Funktion der Austauschkonstanten J für $n = 0.1$ und $n = 0.6$. Weitere Parameter: $S = \frac{7}{2}$, $W = 1$ eV, einfach kubisches Gitter.	42

4.11	Differenz der kinetischen bzw. potentiellen Energie als Funktion der Austauschkonstanten J für zwei Elektronendichten $n = 0.1$ und $n = 0.6$	42
4.12	Energieabhängige Quasiteilchen-Zustandsdichte für verschiedene Kopplungsstärken J . Parameter: Temperatur $T = 0$, Elektronendichte $n = 0$, Bandbreite $W = 1$ eV, Spin $S = \frac{7}{2}$	43
4.13	Links: Quasiteilchen-Bandstruktur entlang Γ -R für verschiedene Temperaturen. Rechts: Quasiteilchen-Zustandsdichte als Funktion der Energie E . Parameter: $J = 0.2$ eV, $n = 0.2$, $W = 1$ eV, $S = \frac{7}{2}$, einfach kubisches Gitter.	44
4.14	Normierte Magnetisierung, Polarisierung m , <i>Spinflip</i> -Korrelationsfunktion (Spinaustauschrate) und <i>Ising</i> -Korrelationsfunktion als Funktion der Temperatur. Parameter: $J = 0.2$ eV, $n = 0.2$, $W = 1$ eV, $S = \frac{7}{2}$, einfach kubisches Gitter. . .	45
4.15	Lokale Spinkorrelationsfunktionen des lokalisierten Spinsystem in Abhängigkeit von der Temperatur. Parameter: $J = 0.2$ eV, $n = 0.2$, $W = 1$ eV, $S = \frac{7}{2}$, einfach kubisches Gitter [4, 5].	46
4.16	Curie-Temperatur T_C in Abhängigkeit von der Elektronendichte n für verschiedene Austauschkopplungen J . Parameter: $W = 1$ eV, $S = \frac{7}{2}$, einfach kubisches Gitter [4, 5, 2, 3].	47
4.17	Curie-Temperatur T_C in Abhängigkeit von der Kopplungskonstanten J für verschiedene Elektronendichten n . Parameter: Wie in Abbildung 4.16 [6].	48
4.18	Für eine Elektronendichte $n = 0.1$ ist die Curie-Temperatur als Funktion der Austauschkopplung J für verschiedene Bandbreiten W dargestellt. Parameter: $S = \frac{7}{2}$, einfach kubisches Gitter.	49
4.19	Curie-Temperatur in Abhängigkeit von der Bandbreite für verschiedene Austauschkopplung J und Elektronendichten n . Parameter: $S = \frac{7}{2}$, einfach kubisches Gitter.	49
4.20	Magnonendispersion in Abhängigkeit der Temperatur T für $J = 0.2$ eV und $n = 0.2$ [5].	50
4.21	Magnonenenergien in verschiedenen Richtungen $(0,0,\xi), (\xi,\xi,0)$ und (ξ,ξ,ξ) . \circ und \bullet experimentelle Daten der Substanz $\text{Pr}_{0.63}\text{Sr}_{0.37}\text{MnO}_3$ und \square für $\text{La}_{0.7}\text{Pb}_{0.3}\text{MnO}_3$ ($T = 10$ K). Heisenberg-Modell mit Austausch zu nächsten Nachbarn (durchgezogene Linie) und Austausch bis zu viertnächsten Nachbarn (gestrichelte Linie) [7, 8].	51
4.22	Magnonendispersion bei $T = 0$ K und $J = 0.2$ eV für verschiedene Elektronendichten n [5].	52

5.1	ASW-Bandstruktur von Gd als Funktion des Wellenvektors. Durchgezogene Linie \uparrow -Zustände und punktierte Linie \downarrow -Zustände. Die 4f-Zustände haben eine flache Dispersion [9].	59
5.2	Partielle Zustandsdichte von Gd als Funktion der Energie für $T = 0$ K. Vergleich der LDA-ASW-Rechnung mit der MCDA-Quasiteilchen-Zustandsdichte.	66
5.3	Quasiteilchen-Zustandsdichte in Abhängigkeit von der Energie $(E - \mu)$ (μ : chemisches Potential) für verschiedene Temperaturen. Die Gesamtzustandsdichte enthält die 5d, 6s und 6p Beiträge [9].	67
5.4	Magnetisierung $\langle S^z \rangle$ als Funktion der Temperatur für das ferromagnetische Gadolinium. Die Meßresultate sind [10] entnommen. $B_{7/2}$ ist die Brillouin-Funktion.	68
5.5	Spinabhängige Spektraldichte in Abhängigkeit von der Energie am Γ -Punkt (Δ_2 -Band) für verschiedene Temperaturen.	69
5.6	Spinaufgelöste Spektraldichte von Gd am Γ -Punkt als Funktion der Energie $(E - \mu)$ für verschiedene Temperaturen. $\sigma = \uparrow (\downarrow)$: obere (untere) Hälfte des Bildes.	70
5.7	Vergleich der berechneten Austauschspaltung mit Photoemissionsdaten aus [11].	71
5.8	Spektraldichte (Quasiteilchen-Bandstruktur) von Gd für $T = 0$ K, $T = 150$ K und $T = 295$ K.	72

Tabellenverzeichnis

5.1	Zusammenstellung einiger experimentellen Daten von Gd.	54
-----	--	----

Kapitel 1

Einleitung

Kollektive magnetische Ordnung setzt die Existenz von permanenten magnetischen Momenten im Festkörper voraus. Elektronen besitzen neben den drei Freiheitsgraden für die Bewegung einen zusätzlichen Freiheitsgrad, den Spin. Seine Existenz läßt sich nur im Rahmen einer relativistisch quantenmechanischen Betrachtung begründen. Für den Magnetismus fester Stoffe ist der Spin verantwortlich, der mit einem magnetischen Moment verknüpft ist.

Der Ferromagnetismus dient beispielsweise in Computerfestplatten der Datenspeicherung, wohingegen in den aktiven Bauelementen die Kontrolle der elektrischen Ladung zugrunde liegt. Erste Nutzung spinpolarisierter Ströme in der Elektronik ergaben sich kurz nach der Entdeckung des Riesenmagnetowiderstandes (*giant magneto-resistance* (GMR)) in mehrlagigen magnetischen Metallschichten. Der GMR manifestiert sich in einer starken Änderung des elektrischen Widerstandes als Funktion eines äußeren Magnetfeldes und beruht auf einer spinabhängigen Streuung der Leitungselektronen [12, 13, 14].

Die metallischen Bauelemente der Magnetoelektronik besitzen gegenüber den herkömmlichen Halbleitern entscheidende Nachteile, da sich die Ladungsträgerdichte in Metallen nicht wie in Halbleiter kontinuierlich variieren läßt. Hinzu kommt das Fehlen einer Energiebandlücke, weshalb sie für viele elektronischen und alle optoelektronischen Anwendungen ungeeignet sind.

Aus den oben genannten Gründen wird gegenwärtig mit großer Intensität untersucht, wie sich der Spinfreiheitsgrad in Halbleiter-Bauelementen ausnutzen läßt. In der Spintronik (Spin-Elektronik) konzentriert sich die aktuelle Forschung auf Spininjektion, Transport und Speicherung der spinpolarisierten Ladungsträger sowie auf die Spinmanipulation [14, 15, 16].

Die elektrische Spininjektion verfolgt das Ziel, spinpolarisierte Elektronen einer magnetischen Schicht durch Anlegen einer elektrischen Spannung in eine benachbarte unmagnetische Halbleiter-Schicht zu transferieren.

Inzwischen wurde der experimentelle Nachweis erbracht, daß Eisenkontakte

eine Spininjektion in GaAs ermöglichen. Allerdings gehören die ferromagnetischen Halbleiter zu den vielversprechenden Materialien, die in der Spintronik Anwendung finden könnten. Hierbei wird ein herkömmlicher Halbleiter mit magnetischen Störstellen dotiert, beispielsweise GaAs mit Mn-Ionen. In solchen Halbleitern besteht eine starke Austauschwechselwirkung zwischen den lokalisierten 3d-Elektronen und den delokalisierten Elektronen bzw. Löchern im Leitungs- bzw. Valenzband, die dazu führt, daß Mn-haltige Halbleiter ausgeprägte magnetische Eigenschaften aufweisen. Beispielsweise läßt sich der Ferromagnetismus in InMnAs sowohl optisch [17, 14] als auch elektrisch [18, 14] manipulieren.

Für breitere Anwendungen muß jedoch die Curie-Temperatur dieser Materialien merklich oberhalb der Raumtemperatur liegen, weshalb man bemüht ist, bei den bereits bekannten ferromagnetischen Halbleitern die Curie-Temperatur weiter zu erhöhen.

Bei der Untersuchung magnetischer Materialien hat sich bewährt, diese in verschiedene Kategorien zu unterteilen. In Isolatoren oder Halbleitern sind lokalisierte magnetische Momente für die spontane Ordnung verantwortlich. Metallische Systeme dagegen lassen sich in *Bandferromagnete* und Metalle mit lokalisierten Momenten unterscheiden. In den *Bandferromagneten*, zu denen beispielsweise die Übergangsmetalle Fe, Co, Ni und deren Verbindungen gehören, wird die magnetische Ordnung von denselben Elektronen verursacht, die zur Leitfähigkeit beitragen.

Im Gegensatz dazu sind in den Metallen mit lokalisierten Momenten (z.B. Lanthanide) vollkommen andere Verhältnisse anzutreffen. Das magnetische Verhalten wird hier von den nur teilweise gefüllten 4f-Schalen, die durch die äußeren 6s-, 6p-, 5d-Schalen gut abgeschirmt sind, hervorgerufen. Daher ist eine direkte Wechselwirkung benachbarter Atome bzw. Spins nicht die entscheidende Wechselwirkung, die als Ursache für eine spontane magnetische Ordnung in Frage kommt. Unter diesen Umständen kann vielmehr eine indirekte Wechselwirkung benachbarter Spins nur über die Leitungselektronen stattfinden und für die spontane magnetische Ordnung sorgen.

Die lokalisierten Spins (4f-Elektronen) polarisieren die beweglichen Leitungselektronen, die ihrerseits ihre Polarisation auf die benachbarten Atome übertragen und dadurch eine indirekte Kopplung benachbarter lokalisierter Spins verursachen. Dieser Mechanismus wurde zuerst von Rudermann und Kittel [19] bei der Kopplung von Kernspins mit Leitungselektronen untersucht. Kasuya [20] und Yosida [21] haben diesen Mechanismus später auf die Untersuchung der magnetischen Eigenschaften von Metallen und Legierungen angewendet. Inzwischen spricht man von der RKKY-Wechselwirkung (gemäß den Initialen der Autoren).

Die RKKY-Wechselwirkung ist eine oszillierende, langreichweitige Wechsel-

wirkung, die in Abhängigkeit vom Abstand ferromagnetisch oder antiferromagnetisch sein kann. Dadurch führt sie zu recht komplizierten magnetischen Strukturen, die in den Metallen der Seltenen Erden experimentell auch gefunden wurden. Die Schrauben- oder helikoidalen Strukturen sind einige, die nicht in das einfache Schema von Ferro-, Antiferro- und Ferrimagnetismus passen, so daß Erweiterungen notwendig sind.

Die Vielfalt an magnetischen Strukturen, die die RKKY-Wechselwirkung hervorbringt, hat ihre Ursache letztlich in einer Austauschwechselwirkung zwischen den lokalisierten Momenten der 4f-Elektronen und der Leitungselektronen. Das s-f-(s-d)-Modell [22, 23, 20, 24, 25, 26] beschreibt diesen Austauschmechanismus als eine ferromagnetische intraatomare Kopplung der lokalisierten Spins mit dem Spin der Leitungselektronen. Der Magnetismus und sein Einfluß auf die elektronische Struktur vieler magnetischer Substanzen können im Rahmen der s-f-(s-d)-Wechselwirkung verstanden werden.

Beispielweise ist in GaMnAs die Austauschwechselwirkung zwischen den lokalisierten Spins der Mn^{2+} -Ionen und den zur Leitfähigkeit beitragenden Löchern für den Ferromagnetismus verantwortlich, wobei jedoch über den Einfluß der Unordnung der Mn-Ionen sowohl experimentell als auch theoretisch keineswegs Klarheit herrscht.

In den ferromagnetischen Halbleitern EuO und EuS läßt sich der *red-shift* [27, 28, 29, 30], der sich in einer Verschiebung der Absorptionskante mit abnehmender Temperatur ($T < T_C$) äußert, auf eine Kopplung der lokalisierten Momente der 4f-Elektronen mit den Leitungselektronen zurückführen.

In den Manganaten (CMR-Materialien) ist der lokalisierte Spin der $3d_{t_{2g}}$ -Elektronen mit dem Spin der Elektronen in den teilweise gefüllten $3d_{e_g}$ -Bändern ferromagnetisch gekoppelt, wobei in den Manganaten die Gitterfreiheitsgrade und die Entartung der e_g -Bänder berücksichtigt werden müssen, um an quantitative Aussagen zu gelangen. Für das s-f-(s-d)-Modell hat sich hier die Bezeichnung Doppelaustausch-Modell (*double exchange model*) [22, 23] durchgesetzt.

In Gadolinium (Gd) wird experimentell ein Überschuß von $0.63 \mu_B$ zum gesamten magnetischen Moment von $7 \mu_B$ gemessen. Für diesen Überschuß ist die Austauschwechselwirkung verantwortlich, die in der ferromagnetischen Phase eine Polarisierung der Leitungselektronen induziert.

In der vorliegenden Arbeit wollen wir uns mit dem Ferromagnetismus und der Temperaturabhängigkeit der elektronischen Struktur metallischer Systeme mit lokalisierten Momenten befassen. Im Mittelpunkt der Untersuchungen wird das Kondo-Gitter-Modell (s-f-(s-d)-Modell) stehen, das sich als eines der wichtigsten Modelle zur Beschreibung von Systemen mit lokalisierten Momenten etabliert hat. Nach der Einführung des Ein-Band-Kondo-Gitter-Modells im Kapitel 2 werden wir im Unterabschnitt 4.2 zwei exakt lösbare Grenzfälle, den

ferromagnetisch gesättigten Halbleiter mit einem leeren Leitungsband und den *atomaren Limes*, vorstellen. Daran können wir einige typische Korrelationseffekte in der elektronischen Struktur demonstrieren, die dem Kondo-Gitter-Modell eigen sind. Dazu zählt beispielsweise das *magnetische Polaron*, das wir in 4.2.1 diskutieren werden. In Kapitel 3 werden einige für diese Arbeit wichtige Elemente des Formalismus der Greenschen Funktionen dargelegt.

Im allgemeinen ist eine analytisch exakte Lösung des Kondo-Gitter-Modells noch nicht bekannt. Deshalb haben wir für das elektronische System in Kapitel 4 ein Näherungsverfahren mit Hilfe der Bewegungsgleichungsmethode entwickelt, um dessen Selbstenergie zu berechnen. Das Untersystem der lokalisierten Spins behandeln wir im Rahmen eines *modifizierten* RKKY-Verfahrens, das den Wechselwirkungsterm des Kondo-Gitter-Modells auf ein effektives Modell vom Heisenberg-Typ abbildet. Die resultierenden effektiven Austauschintegrale hängen von der Selbstenergie des elektronischen Systems ab, so daß sich die magnetischen Eigenschaften und die Temperaturabhängigkeit der elektronischen Struktur selbstkonsistent bestimmen lassen. Die Vorstellung und Diskussion der Modelluntersuchungen sind im Abschnitt 4.3 zu finden, dem sich die Diskussion der erzielten Ergebnisse im Abschnitt 4.4 anschließt.

Den Schwerpunkt dieser Arbeit bildet das Kapitel 5, worin wir uns mit der Untersuchung sowohl der temperaturabhängigen elektronischen Struktur als auch der magnetischen Eigenschaften der Seltenen Erde Gadolinium befassen. Die elektronische Struktur von Gadolinium, das als Prototyp eines ferromagnetischen Metalls mit lokalisierten Momenten gilt, wird von zwei wohldefinierten Untersystemen gebildet. Eines davon umfaßt die itineranten Elektronen der relativ breiten Bänder mit überwiegendem 5d- und 6s-Charakter. Elektronen in den sogenannten 5d- und 6s-Bändern tragen in Gadolinium hauptsächlich zur Leitfähigkeit bei. Dem zweiten Untersystem gehören Elektronen in den magnetisch aktiven 4f-Bändern an, bei denen die Wellenfunktion benachbarter Gitterplätze einen verschwindenden Überlapp aufweisen und deshalb als streng lokalisiert angesehen werden können.

Eine quantitative, realistische Beschreibung der Temperaturabhängigkeit der elektronischen Struktur realer Substanzen kann nur durch die Kombination einer vielteilchentheoretischen Auswertung mit einer *Ab-initio*-Bandstrukturrechnung erreicht werden. Dazu werden wir in dieser Arbeit die Bandstruktur von Gadolinium mit Hilfe der *augmented-spherical-wave*-Methode (ASW-Methode) im Rahmen der Dichte-Funktional-Theorie (DFT) in der lokalen Spin-Dichte-Näherung (LSDA) verwenden. Die Bandstruktur legt so die Ein-Teilchen-Energie des Modell-Hamilton-Operators fest. Die Austauschkonstante des Kondo-Gitter-Modells wird ebenfalls durch die *Ab-initio*-Rechnung bestimmt.

Die vielteilchentheoretische Auswertung beinhaltet die Wahl eines geeigneten Modell-Hamilton-Operators und Eliminierung der Doppelzählung von relevanten

Wechselwirkungen, die bei der Kombination der vielteilchentheoretischen Auswertung mit *Ab-initio*-Bandstrukturechnungen auftreten.

Am Ende des Kapitels werden die auf diesem Modell basierenden Berechnungen vorgestellt und die Ergebnisse diskutiert.

Kapitel 2

Modelle korrelierter Elektronen

Der Magnetismus fester Stoffe kann im Rahmen etablierter Modelle beschrieben werden, die die jeweils interessierende experimentelle oder theoretische Problematik berücksichtigen, und gleichzeitig unnötige mathematische Schwierigkeiten vermeiden. Solche Vereinfachungen werden durch Modellvorstellungen realisiert, die trotz ihrer Einfachheit eine echte Wechselwirkung enthalten. In den nächsten Unterkapiteln werden wir drei Modelle korrelierter Elektronen, die den Magnetismus beschreiben, einführen und erläutern.

2.1 Heisenberg-Modell

Das Heisenberg-Modell [31] ist das fundamentale Modell in der Theorie des Magnetismus lokalisierter Momente. Es beschreibt die Austauschwechselwirkung zwischen Momenten bzw. Spins, die an Gitterplätzen lokalisiert sind. Die Austauschwechselwirkung ist die Ursache für das Auftreten einer spontanen magnetischen Ordnung. Das Heisenberg-Modell ist dafür geeignet, den Magnetismus der Isolatoren zu untersuchen. Die lokalisierten magnetischen Momente der Isolatoren stammen aus einer unvollständig gefüllten Elektronenschale wie z.B. der 3d-, 4d-, 4f-, 5f-Schale.

Der Hamilton-Operator des Heisenberg-Modells lautet

$$H = - \sum_{ij} J_{ij} \mathbf{S}_i \cdot \mathbf{S}_j, \quad (2.1)$$

wobei die Spinoperatoren die bekannten Kommutatorrelation erfüllen.

$$[S_i^\alpha, S_j^\beta]_- = i\hbar \varepsilon_{\alpha\beta\gamma} \delta_{ij} S_i^\gamma; \quad \alpha, \beta = x, y, z \quad (2.2)$$

J_{ij} bezeichnen die Austauschintegrale.

Es hat sich als zweckmäßig erwiesen, die Stufen-Operatoren einzuführen:

$$S_i^\pm = S_i^x \pm iS_i^y. \quad (2.3)$$

Damit lassen sich die x - und y -Komponenten des Spinoperators \mathbf{S}_i wie folgt umschreiben:

$$S_i^x = \frac{1}{2} (S_i^+ + S_i^-), \quad S_i^y = \frac{1}{2i} (S_i^+ - S_i^-). \quad (2.4)$$

Schließlich erhalten wir aus (2.1) eine für praktische Rechnungen geeignetere Darstellung des Heisenberg-Modells:

$$H = - \sum_{ij} J_{ij} \left[\frac{1}{2} (S_i^+ S_j^- + S_i^- S_j^+) + S_i^z S_j^z \right]. \quad (2.5)$$

Das Heisenberg-Modell kann unter Näherungsannahmen aus dem allgemeinen Hamilton-Operator für einen Festkörper abgeleitet werden [32].

Für ferromagnetische Kopplungen $J_{ij} > 0$ und $T = 0$ K ist es möglich, den exakten Grundzustand des Heisenberg-Modells anzugeben. Der Grundzustand ist durch eine parallele Ausrichtung aller Spins charakterisiert. Für Temperaturen $T > 0$ K sind exakte Aussagen nicht mehr möglich, dennoch hat sich für tiefe Temperaturen die renormierte Spinwellen-Näherung von Dyson [33, 34] als eine sehr gute Näherung erwiesen, Abweichungen vom Grundzustand zu beschreiben.

2.2 Hubbard-Modell

Zur Untersuchung des prinzipiellen Einflusses der Coulomb-Wechselwirkung auf die elektronischen Eigenschaften wird häufig das sogenannte Hubbard-Modell [35, 36] benutzt. In der Wannier-Darstellung und mit der Beschränkung auf ein s -Band lautet der Hamilton-Operator eines Systems wechselwirkender Elektronen

$$H = \sum_{ij\sigma} T_{ij} c_{i\sigma}^\dagger c_{j\sigma} + \frac{1}{2} \sum_{ijkl\sigma\sigma'} V_{ij,kl} c_{i\sigma}^\dagger c_{j\sigma'}^\dagger c_{l\sigma'} c_{k\sigma}, \quad (2.6)$$

wobei $V_{ij,kl}$ das Coulomb-Matrixelement ist.

Zur Beschreibung der schmalen Bänder (3d-Übergangsmetalle) können die Matrixelemente in (2.6) mit atomaren Wellenfunktionen gebildet werden. Wegen des geringen Überlappens der Wellenfunktion benachbarter Gitterplätze ist die Beschränkung auf das dominierende Matrixelement der Coulomb-Wechselwirkung $U = V_{ii,ii}$ gerechtfertigt. Diese Vereinfachung führt zum Hubbard-Modell

$$H = \sum_{ij\sigma} T_{ij} c_{i\sigma}^\dagger c_{j\sigma} + \frac{U}{2} \sum_{i\sigma} n_{i\sigma} n_{i-\sigma}. \quad (2.7)$$

Darin wird ausschließlich die Wechselwirkung zwischen Elektronen berücksichtigt, die sich am gleichen Gitterplatz i mit entgegengesetzter Spinprojektion σ befinden.

Das Hubbard-Modell wird herangezogen, um den Magnetismus und die elektronischen Eigenschaften der Übergangsmetalle zu untersuchen. Darüber hinaus stellt es ein mögliches Modell zur Beschreibung der sogenannten Mott-Hubbard-Isolatoren wie z.B. NiO, CoO und FeO dar.

2.3 Kondo-Gitter-Modell

Zur Beschreibung korrelierter Elektronensysteme mit nahezu dispersionsfreien Zuständen (4f) und fast freien Elektronen (5d-6s) hat sich das s-f (s-d) Modell [37, 22, 23] oder auch Kondo-Gitter-Modell als geeignet erwiesen. Für ein nichtentartetes s-Band wird der Beitrag zur kinetischen Energie der Elektronen durch

$$H_0 = \sum_{ij\sigma} T_{ij} c_{i\sigma}^+ c_{j\sigma} \quad (2.8)$$

beschrieben, wobei $c_{i\sigma}^+$ ($c_{i\sigma}$) ein Elektron am Gitterplatz \mathbf{R}_i mit der Spinprojektion $\sigma = \uparrow, \downarrow$ erzeugt (vernichtet). T_{ij} sind die Hüpfmatrixelemente, die mit der Bloch-Energie $\varepsilon(\mathbf{k})$ über die Fourier-Transformation zusammenhängen:

$$T_{ij} = \frac{1}{N} \sum_{\mathbf{k}} e^{i\mathbf{k}(\mathbf{R}_i - \mathbf{R}_j)} \varepsilon(\mathbf{k}). \quad (2.9)$$

Die Bloch-Energie $\varepsilon(\mathbf{k})$ eines einfach kubischen Gitters in der *tight-binding*-Näherung lautet:

$$\varepsilon(\mathbf{k}) = -\frac{W}{6} (\cos(k_x a) + \cos(k_y a) + \cos(k_z a)) + T_0. \quad (2.10)$$

Gleichung (2.10) gilt für ein einfaches s-Band. T_0 und W bezeichnen Bandschwerpunkt und Bandbreite, a ist die Gitterkonstante.

Nichttriviale Korrelationseffekte werden durch einen Interbandterm

$$H_{sf} = -\frac{J}{\hbar^2} \sum_i \boldsymbol{\sigma}_i \cdot \mathbf{S}_i, \quad (2.11)$$

der die Wechselwirkung zwischen dem Spin $\boldsymbol{\sigma}_i$ der Leitungselektronen und dem Spin \mathbf{S}_i der stark lokalisierten 4f-Zustände beschreibt, verursacht. Die Konstante J gibt die Stärke der Austauschwechselwirkung beider Teilsysteme an.

Unter Verwendung der zweiten Quantisierung für den Elektronspin $\boldsymbol{\sigma}_i$

$$\boldsymbol{\sigma}_i^+ = \hbar c_{i\uparrow}^+ c_{i\downarrow}; \boldsymbol{\sigma}_i^- = \hbar c_{i\downarrow}^+ c_{i\uparrow}; \boldsymbol{\sigma}_i^z = \frac{\hbar}{2} (n_{i\uparrow} - n_{i\downarrow}) \quad (2.12)$$

läßt sich (2.11) in eine für praktische Zwecke geeignete Form bringen:

$$H_{sf} = -\frac{J}{2\hbar} \sum_{i\sigma} (z_{\sigma} S_i^z n_{i\sigma} + S_i^{\sigma} c_{i-\sigma}^+ c_{i\sigma}). \quad (2.13)$$

$n_{i\sigma} = c_{i\sigma}^+ c_{i\sigma}$ ist der fermionische Besetzungszahloperator und $z_{\uparrow} = 1$, $z_{\downarrow} = -1$. $S_i^{\sigma} = S_i^x + i z_{\sigma} S_i^y$ bezeichnet den Stufenoperator (2.3). Der erste Term in (2.13), der *Ising*-Term, beschreibt die Wechselwirkung zwischen der z -Komponente σ_i^z des Spins der Leitungselektronen und der z -Komponente des lokalisierten Spins. Durch den zweiten Term, den *Spinflip*-Term, werden *Spinflip*-Prozesse zwischen beiden Teilsystemen berücksichtigt.

Die Parameter des Modells sind die Austauschkonstante J , die Bandbreite W und die Spinquantenzahl S , die sich zu einer dimensionslosen Größe, der effektiven Kopplung $\frac{JS}{W}$ zusammenfassen lassen. Ein weiterer Parameter, der die Eigenschaften des Kondo-Gitter-Modells entscheidend beeinflusst, ist die Elektronendichte n , die für ein einfaches Band Werte im Bereich $0 \leq n \leq 2$ annimmt.

Im Bereich starker Kopplung $JS \gg W$ ist das Kondo-Gitter-Modell auch als Doppelaustausch-Modell [23, 38, 39] bekannt. Der Doppelaustausch-Mechanismus wurde eingeführt, um die ungewöhnlichen magnetischen und elektrischen Eigenschaften der Manganate [40, 41] zu erklären. Manganate sind Verbindungen mit der allgemeinen Perowskit-Struktur $T_{1-x}D_x\text{MnO}_3$, wobei T für ein Lanthanid (La, Pr, Nd) und D für ein zweiwertiges Erdalkali-Metall (Ca, Sr, Ba, Pb) stehen. Die undotierten Verbindungen LaMnO_3 und CaMnO_3 haben einen antiferromagnetischen Grundzustand. In den mit Calcium dotierten Substanzen liegt Mangan in einer homogenen Valenzmischung $\text{Mn}_{1-x}^{3+}\text{-Mn}_x^{4+}$ vor. Die drei $3d\text{-}t_{2g}$ Elektronen aus Mn^{4+} können als streng lokalisiert angesehen werden, die einen Spin $S = \frac{3}{2}$ liefern. Die restlichen $(1-x)$ -Elektronen mit $3d\text{-}e_g$ Charakter sind itinerant und koppeln ferromagnetisch ($J > 0$) zum lokalisierten Spin. Im Dotierungsbereich $x \approx 0.2 - 0.4$ werden ferromagnetisches und metallisches Verhalten beobachtet, die zu drastischen Änderungen im Magnetowiderstand führen. Dieses Phänomen ist in der Literatur als *colossal magneto-resistance* (CMR) bekannt. Voraussetzung dafür ist ein Metall-Isolator Übergang in der Nähe der Curie-Temperatur T_C .

Kapitel 3

Elemente der Vielteilchentheorie

In diesem Kapitel sollen die grundlegenden Eigenschaften der Greenschen Funktionen eingeführt werden. Dabei werden wir uns mit ihrer Bewegungsgleichung befassen, die sich aus der Bewegungsgleichung für Operatoren in der Heisenbergschen Darstellung ergibt.

Von größter Bedeutung ist zudem das Spektraltheorem, das die Berechnung von Korrelationsfunktionen auf einem verhältnismäßig einfachen Weg aus den Greenschen Funktionen gestattet. Abschließend werden wir die Momente der Spektraldichte und deren Zusammenhang zur Hochenergieentwicklung der Greenschen Funktion untersuchen.

3.1 Greensche Funktionen

Greensche Funktionen können auf unterschiedliche Weise definiert werden. Die kausale Greensche Funktion ist als thermodynamischer Mittelwert des zeitgeordneten Produkts definiert. Sie ist für die Entwicklung einer diagrammatischen Störungstheorie prinzipiell besser geeignet als die retardierte Greensche Funktion. Aufgrund der Struktur des Hamilton-Operators (2.11) ist es jedoch nicht ohne weiteres möglich, die standarddiagrammatischen Regeln auf diesen Fall zu übertragen. Dieser Umstand kann auf die komplizierten Vertauschungsrelationen der Spinoperatoren (2.2) zurückgeführt werden. Wir werden in dieser Arbeit die Bewegungsgleichungsmethode verwenden.

Die retardierte und avancierte Greensche Funktion sind als thermodynamischer Erwartungswert des Kommutators ($\eta = 1$) oder Antikommutators ($\eta = -1$) zweier Operatoren A und B zu verschiedenen Zeiten definiert [42]:

$$G_{AB}^{\text{ret}}(t, t') = -i\Theta(t - t')\langle [A(t), B(t')]_{-\eta} \rangle \quad (3.1)$$

und

$$G_{AB}^{\text{av}}(t, t') = -i\Theta(t' - t)\langle [A(t), B(t')]_{-\eta} \rangle. \quad (3.2)$$

$\langle \dots \rangle$ bezeichnet den thermodynamischen Erwartungswert bezüglich der großkanonischen Gesamtheit:

$$\langle \dots \rangle = \frac{1}{\Xi} \text{Sp} \left(e^{-\beta(H - \mu N)} \dots \right), \quad \beta = \frac{1}{k_B T}. \quad (3.3)$$

H ist der Hamilton-Operator des Systems, Ξ die großkanonische Zustandssumme, μ das chemische Potential und N der Gesamtteilchenzahloperator. Für die Stufenfunktion gilt folgende Definition:

$$\Theta(t - t') = \begin{cases} 1 & : t > t' \\ 0 & : t < t' \end{cases}. \quad (3.4)$$

Sie legt die unterschiedlichen Randbedingungen der retardierten und avancierten Greenschen Funktionen fest:

$$G^{\text{ret}}(t, t') = 0 \quad \forall \quad t < t', \quad (3.5)$$

$$G^{\text{av}}(t, t') = 0 \quad \forall \quad t > t'. \quad (3.6)$$

Die Operatoren $A(t)$ und $B(t')$ sind in der Heisenberg-Darstellung

$$A(t) = e^{\frac{i}{\hbar} \mathcal{H} t} A(0) e^{-\frac{i}{\hbar} \mathcal{H} t}, \quad (3.7)$$

mit $\mathcal{H} = H - \mu N$ gegeben.

Mit Hilfe der zu (3.7) äquivalenten Differentialgleichung, der Heisenbergschen Bewegungsgleichung für Operatoren,

$$i\hbar \frac{\partial A(t)}{\partial t} = [A, \mathcal{H}]_{-}(t), \quad (3.8)$$

ergibt sich die Bewegungsgleichung der Greenschen Funktion $G_{AB}^{\alpha}(t, t')$ ($\alpha = \text{ret}, \text{av}$)

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} G_{AB}^{\alpha}(t, t') = \hbar \delta(t - t') \langle [A, B]_{-\eta} \rangle + \langle \langle [A, \mathcal{H}]_{-}(t); B(t') \rangle \rangle^{\alpha}. \quad (3.9)$$

Die retardierte und avancierte Greensche Funktion erfüllen dieselbe Bewegungsgleichung, aber mit verschiedenen Randbedingungen. In der Bewegungsgleichung (3.9) stellt $\langle \langle [A, \mathcal{H}]_{-}(t); B(t') \rangle \rangle^{\alpha}$ eine neue – im allgemeinen kompliziertere – Greensche Funktion dar, für die eine zu (3.9) analoge Bewegungsgleichung gilt. Diese enthält wiederum kompliziertere Greensche Funktionen. Weitere Bewegungsgleichungen koppeln so an noch kompliziertere Greensche Funktionen und

wir erhalten dadurch eine Gleichungshierarchie, die uns daran hindert, ein geschlossenes Gleichungssystem zu erhalten. Die Gleichungshierarchie, die in den nichttrivialen Fällen von hoher Ordnung sein wird, führt in den praktischen Berechnungen der gesuchten Greenschen Funktion nur unter Verwendung von Näherungen zu einem geschlossenen Gleichungssystem.

Der Übergang in die Energiedarstellung durch

$$G_{AB}^{\alpha}(t, t') = \frac{1}{2\pi\hbar} \int_{-\infty}^{+\infty} dE G_{AB}^{\alpha}(E) e^{-\frac{i}{\hbar}E(t-t')} \quad (3.10)$$

überführt die Bewegungsgleichung (3.9) in eine algebraische Gleichung

$$EG_{AB}^{\alpha}(E) = \hbar \langle [A, B]_{-\eta} \rangle + \langle \langle [A, \mathcal{H}]_{-}; B \rangle \rangle_E^{\alpha}. \quad (3.11)$$

Eine zu (3.11) äquivalente Gleichung ergibt sich, wenn wir den zweiten Operator in (3.1) und (3.2) als den aktiven Operator betrachten:

$$EG_{AB}^{\alpha}(E) = \hbar \langle [A, B]_{-\eta} \rangle - \langle \langle A; [B, \mathcal{H}]_{-} \rangle \rangle_E^{\alpha}. \quad (3.12)$$

Eine weitere wichtige Funktion der Vielteilchentheorie ist die Spektraldichte, die als Erwartungswert des Kommutators ($\eta = 1$) oder Antikommutators ($\eta = -1$) der Operatoren $A(t)$ und $B(t')$ definiert ist:

$$S_{AB}(t, t') = \frac{1}{2\pi} \langle [A(t), B(t')]_{-\eta} \rangle. \quad (3.13)$$

Die Spektraldarstellungen der Korrelationsfunktionen $\langle A(t)B(t') \rangle$ und $\langle B(t')A(t) \rangle$, die die Spektraldichte (3.13) definieren, ergeben zusammen die sogenannte Spektraldarstellung der Spektraldichte [43, 44, 45]:

$$S_{AB}(E) = \frac{\hbar}{\Xi} \sum_{nm} \langle E_n | A | E_m \rangle \langle E_m | B | E_n \rangle e^{-\beta E_n} (e^{\beta E} + \eta) \delta(E - (E_n - E_m)). \quad (3.14)$$

Die Spektraldichte besteht aus einer gewichteten Summe von δ -Funktionen, die bei den möglichen Anregungsenergien des Systems lokalisiert sind. Zur Spektraldichte tragen jedoch nur solche Anregungsenergien bei, für die die Matrixelemente der Operatoren A und B von Null verschieden sind. Weiterhin ist gemäß (3.14)

$$G_{AB}^{\text{ret}}(E) = \frac{\hbar}{\Xi} \sum_{nm} \langle E_n | A | E_m \rangle \langle E_m | B | E_n \rangle \frac{e^{-\beta E_n} (e^{\beta E} + \eta)}{E - (E_n - E_m) \pm i0^+}. \quad (3.15)$$

Die unterschiedlichen Randbedingungen (3.5) und (3.6) der retardierten und avancierten Greenschen Funktionen werden in der Energiedarstellung durch die infinitesimale Größe $i0^+$ berücksichtigt. Daher läßt sich die retardierte Greensche

Funktion in die obere komplexe Halbebene analytisch fortsetzen. Die avancierte Greensche Funktion ist dagegen in die untere komplexe Halbebene analytisch fortsetzbar. Die beiden Spektraldarstellungen (3.14) und (3.15) erlauben eine nützliche Beziehung zwischen den Greenschen Funktionen $G_{AB}^{\text{ret,av}}(E)$ und der Spektraldichte $S_{AB}(E)$ herzuleiten:

$$S_{AB}(E) = \frac{i}{2\pi} (G_{AB}^{\text{ret}}(E) - G_{AB}^{\text{av}}(E)). \quad (3.16)$$

Unter der Voraussetzung, daß die Spektraldichte $S_{AB}(E)$ reell ist, erhalten wir den einfachen Zusammenhang zur Greenschen Funktion

$$S_{AB}(E) = \mp \frac{1}{\pi} \text{Im} G_{AB}^{\text{ret}}(E). \quad (3.17)$$

Der Zusammenhang zwischen der Korrelationsfunktion $\langle A(t)B(t') \rangle$ und der Greenschen Funktion $G_{AB}(E)$ wird durch das sogenannte Spektraltheorem [44, 45] wiedergegeben:

$$\langle B(t')A(t) \rangle = \frac{1}{\hbar} \int_{-\infty}^{+\infty} dE \frac{S_{AB}(E)}{e^{\beta E} - \eta} e^{-\frac{i}{\hbar} E(t-t')} + \frac{1}{2} (1 + \eta) D. \quad (3.18)$$

Die Korrelationsfunktion $\langle B(t')A(t) \rangle$ ist durch die Kommutator-Spektraldichte $S_{AB}(E)$ ($\eta = 1$) nicht vollständig bestimmt. Der fehlende Beitrag wird durch D berücksichtigt. Die Berechnung dieser energieunabhängigen Konstanten kann auf die Untersuchung des analytischen Verhaltens bei $E = 0$ der entsprechenden Antikommutator-Green-Funktion ($\eta = -1$) zurückgeführt werden [44, 45]. Es ergibt sich folgender Zusammenhang:

$$\lim_{E \rightarrow 0} E G_{AB}^{\eta=-1}(E) = 2\hbar D. \quad (3.19)$$

$G_{AB}^{\eta}(E)$ ist eine einheitliche Funktion in der komplexen Ebene, die für $\text{Im} E > 0$ in die retardierte und für $\text{Im} E < 0$ in die avancierte Greensche Funktion übergeht. Der Grenzübergang in (3.19) muß in der komplexen Ebene vollzogen werden.

Das Spektraltheorem erlaubt uns, aus passend definierten Greenschen Funktionen geeignete Korrelationsfunktionen und damit makroskopische Größen zu berechnen.

Wie bereits erwähnt, sind bei der praktischen Bestimmung der Greenschen Funktion in nichttrivialen Fällen Näherungen unvermeidbar. Aus diesem Grund ist es von großer Bedeutung, über allgemein gültige Aussagen zu verfügen, die zur Bewertung der Qualität der Näherungen hinzugezogen werden können. Dazu werden wir unter anderem die Momente der Spektraldichte $S_{AB}(E)$ verwenden. Das n -te Moment der Spektraldichte ist wie folgt definiert:

$$M_{AB}^{(n)} = \frac{1}{\hbar} \int_{-\infty}^{+\infty} dE E^n S_{AB}(E). \quad (3.20)$$

Mit Hilfe der Gleichungen (3.8) und (3.13) läßt sich eine äquivalente Darstellung der Momente der Spektraldichte angeben:

$$M_{AB}^{(n)} = \left\langle \left[\underbrace{[\dots [A, \mathcal{H}]_-, \dots, \mathcal{H}]_-}_{n-p\text{-facher Kommutator}}, \underbrace{[\mathcal{H}, \dots [\mathcal{H}, B]_- \dots]_-}_{p\text{-facher Kommutator}} \right]_- \right\rangle. \quad (3.21)$$

Die Vorteile dieser Darstellung gegenüber (3.20) sind offensichtlich, da zur Berechnung der Spektralmomente die explizite Kenntnis der Spektraldichte nicht erforderlich ist. Schließlich sind noch das asymptotische Verhalten der Greenschen Funktion für $E \rightarrow \pm\infty$ und dessen Zusammenhang mit den Momenten der Spektraldichte zu erwähnen. Aus der Spektraldarstellung der Greenschen Funktion

$$G_{AB}^{\text{ret}}(E) = \int_{-\infty}^{+\infty} d\omega \frac{S_{AB}(\omega)}{E - \omega + i0^+} \quad (3.22)$$

sind Aussagen über deren asymptotisches Verhalten für große Energien möglich. Die Entwicklung nach $\frac{1}{E}$ für große Energien E liefert die Hochenergieentwicklung der Greenschen Funktion

$$G_{AB}^{\text{ret}}(E) = \sum_{m=0}^{\infty} \frac{\hbar}{E^{m+1}} \frac{1}{\hbar} \int_{-\infty}^{+\infty} d\omega \omega^m S_{AB}(\omega) = \hbar \sum_{m=0}^{\infty} \frac{M_{AB}^{(m)}}{E^{m+1}}, \quad (3.23)$$

wobei die Koeffizienten dieser Entwicklung gerade die Momente der Spektraldichte $S_{AB}(E)$ sind.

Kapitel 4

Ein-Band-Kondo-Gitter-Modell

Das Ein-Band-Kondo-Gitter-Modell haben wir im Abschnitt 2.3 eingeführt:

$$H = \sum_{ij\sigma} T_{ij} c_{i\sigma}^+ c_{j\sigma} - \frac{J}{2\hbar} \sum_{i\sigma} (z_{\sigma} S_i^z n_{i\sigma} + S_i^{\sigma} c_{i-\sigma}^+ c_{i\sigma}). \quad (4.1)$$

Die Wechselwirkung zwischen dem Untersystem der lokalisierten Spins und dem der Leitungselektronen verhindert im allgemeinen eine exakte Lösung des durch (4.1) beschriebenen Vielteilchenproblems. Um so wichtiger ist es, in Spezialfällen exakte Aussagen treffen zu können, die als Orientierung dienen, Näherungen zu bewerten. Wir können für das Kondo-Gitter-Modell eine exakte Lösung für den Spezialfall angeben, daß das lokalisierte Spinsystem vollständig ausgerichtet und das Leitungsband leer ist. Den Grenzfall des *ferromagnetisch gesättigten Halbleiters* [46, 47, 48, 49, 50, 51], wie er oft genannt wird, werden wir im Abschnitt 4.2.1 ausführlich behandeln. Anhand dieser exakten Lösung können einige für das Kondo-Gitter-Modell typische elementare Prozesse, wie z.B. die Bildung eines gebundenen Zustandes, des *magnetischen Polarons*, diskutiert werden.

Neben dem Grenzfall des *ferromagnetisch gesättigten Halbleiters* ist der Grenzfall des *atomaren Limes* [52, 26, 53] exakt lösbar. Hierfür beschränken wir die Hüpfmatrixelemente nur auf die diagonalen Terme $T_{ij} \rightarrow \delta_{ij} T_{ij}$. Die Ein-Elektronen-Green-Funktion kann auch in diesem Spezialfall exakt angegeben werden. Das vollständige Anregungsspektrum des Ein-Band-Kondo-Gitter-Modells kann daher aus der exakten Ein-Elektronen-Spektraldichte des *atomaren Limes* abgelesen werden.

4.1 Allgemeine Relationen

Wir wollen in diesem Abschnitt einige allgemeine Relationen, die für die Diskussion der Ergebnisse in dieser Arbeit von Bedeutung sind, einführen. Die retardier-

te Ein-Elektronen-Green-Funktion spielt bei der Untersuchung des elektronischen Systems eine entscheidende Rolle, denn die Ein-Teilchen-Anregungen des Systems machen sich als einfache Pole der Ein-Elektronen-Green-Funktion $G_{\mathbf{k}\sigma}(E)$ bemerkbar. In dieser Arbeit werden wir aber auch die Wannier-Darstellung der Ein-Teilchen-Green-Funktion $G_{\mathbf{k}\sigma}(E)$ verwenden, die wie folgt lautet:

$$G_{ij\sigma}(E) = \langle\langle c_{i\sigma}; c_{j\sigma}^+ \rangle\rangle_E = -i \int_0^\infty dt e^{iEt} \langle [c_{i\sigma}(t), c_{j\sigma}^+(0)]_+ \rangle, \quad (4.2)$$

wobei für die Operatoren A und B (Gleichung 3.1) jeweils $c_{i\sigma}$ und $c_{j\sigma}^+$ gesetzt wurden. Wir wollen die Bewegungsgleichung der Ein-Elektronen-Green-Funktion untersuchen. Entscheidend dafür wird der Hamilton-Operator des zu behandelnden Systems sein. In diesem Kapitel beschränken wir uns zunächst auf das Ein-Band-Kondo-Gitter-Modell (4.1). Hierfür erhalten wir zur Berechnung der Ein-Elektronen-Green-Funktion die Bewegungsgleichung:

$$\sum_m ((E + \mu)\delta_{im} - T_{im}) G_{mj\sigma}(E) = \hbar \delta_{ij} + \langle\langle [c_{i\sigma}, H_{sf}]_-; c_{j\sigma}^+ \rangle\rangle_E. \quad (4.3)$$

Der Kommutator auf der rechten Seite von (4.3) führt auf zwei neue Greensche Funktionen:

$$\langle\langle [c_{i\sigma}, H_{sf}]_-; c_{j\sigma}^+ \rangle\rangle_E = -\frac{J}{2\hbar} (z_\sigma \Gamma_{ij\sigma}(E) + F_{ij\sigma}(E)). \quad (4.4)$$

Die *Isingfunktion* $\Gamma_{ikj\sigma}(E)$, die aus dem ersten Term der Wechselwirkung (4.1) hervorgeht, lautet wie folgt:

$$\Gamma_{ikj\sigma}(E) = \langle\langle S_i^z c_{k\sigma}; c_{j\sigma}^+ \rangle\rangle_E. \quad (4.5)$$

Die mit dem zweiten Term der Wechselwirkung verbundene höhere Greensche Funktion ist die *Spinflipfunktion* $F_{ikj\sigma}(E)$:

$$F_{ikj\sigma}(E) = \langle\langle S_i^{-\sigma} c_{k-\sigma}; c_{j\sigma}^+ \rangle\rangle_E. \quad (4.6)$$

Beide höheren Greenschen Funktionen verhindern im allgemeinen eine exakte Lösung des durch (4.1) definierten Vielteilchenproblems. Eine formale Lösung können wir jedoch angeben, wenn wir eine komplexwertige Funktion, die Selbstenergie $M_{ij\sigma}(E)$, einführen:

$$\langle\langle [c_{i\sigma}, H_{sf}]_-; c_{j\sigma}^+ \rangle\rangle_E = \sum_k M_{ik\sigma}(E) G_{kj\sigma}(E). \quad (4.7)$$

Mit der noch unbekannten Selbstenergie $M_{ij\sigma}(E)$ erhalten wir formal aus Gleichung (4.3) die Dyson-Gleichung zur Bestimmung der Ein-Elektronen-Green-Funktion:

$$\sum_m ((E + \mu)\delta_{im} - T_{im} - M_{im\sigma}(E)) G_{mj\sigma}(E) = \hbar \delta_{ij}. \quad (4.8)$$

Für die weitere Diskussion setzen wir voraus, daß die Selbstenergie $M_{ij\sigma}(E)$ bekannt sei. Die Fourier-transformierte der Gleichung (4.8)

$$G_{\mathbf{k}\sigma}(E) = \frac{\hbar}{E + \mu - \varepsilon(\mathbf{k}) - M_{\mathbf{k}\sigma}(E) + i0^+}, \quad (4.9)$$

können wir mit der Einführung der wechselwirkungsfreien Ein-Elektronen-Green-Funktion

$$G_{\mathbf{k}}^{(0)}(E) = \frac{\hbar}{E + \mu - \varepsilon(\mathbf{k}) + i0^+} \quad (4.10)$$

in die geläufigere Form

$$G_{\mathbf{k}\sigma} = G_{\mathbf{k}}^{(0)}(E) + G_{\mathbf{k}}^{(0)}(E) \frac{1}{\hbar} M_{\mathbf{k}\sigma}(E) G_{\mathbf{k}\sigma}(E). \quad (4.11)$$

umschreiben. Nun wird deutlich, daß die Selbstenergie $M_{\mathbf{k}\sigma}(E)$ alle Prozesse enthält, die durch die Vielteilchenwechselwirkung verursacht werden, denn für $M_{\mathbf{k}\sigma}(E) = 0$ ist die Ein-Elektronen-Green-Funktion mit der wechselwirkungsfreien Greenschen Funktion (4.10) identisch.

Die zur Ein-Elektronen-Green-Funktion äquivalente Vielteilchenfunktion ist die Ein-Elektronen-Spektraldichte $S_{ij\sigma}(E)$, die sich in diesem Spezialfall aus der Ein-Elektronen-Green-Funktion als deren Imaginärteil ergibt (3.17):

$$S_{\mathbf{k}\sigma}(E) = -\frac{1}{\pi} \text{Im} G_{\mathbf{k}\sigma}(E). \quad (4.12)$$

Aus (4.9) folgt

$$S_{\mathbf{k}\sigma}(E) = -\frac{\hbar}{\pi} \frac{\text{Im} M_{\mathbf{k}\sigma}(E)}{(E + \mu - \varepsilon(\mathbf{k}) - \text{Re} M_{\mathbf{k}\sigma}(E))^2 + (\text{Im} M_{\mathbf{k}\sigma}(E))^2}. \quad (4.13)$$

Für relativ kleine $\text{Im} M_{\mathbf{k}\sigma}(E)$ wird die Spektraldichte ausgeprägte Peaks an den Resonanzstellen $E_{i\sigma}(\mathbf{k})$, die durch die Lösung der sogenannten Quasiteilchen-Gleichung gegeben sind, aufweisen [43]:

$$E_{i\sigma}(\mathbf{k}) + \mu - \varepsilon(\mathbf{k}) - \text{Re} M_{\mathbf{k}\sigma}(E_{i\sigma}(\mathbf{k})) = 0, \quad i = 1, 2, \dots, \quad (4.14)$$

die experimentell als winkel- und spinaufgelöste Spektrallinien in einem Photoemissionsspektrum nachweisbar sind. Die Quasiteilchen-Zustandsdichte $\rho_\sigma(E)$ erhalten wir durch Summation der Spektraldichte $S_{\mathbf{k}\sigma}(E)$ über alle Wellenzahlen der ersten Brillouin-Zone:

$$\rho_\sigma(E) = \frac{1}{N\hbar} \sum_{\mathbf{k}} S_{\mathbf{k}\sigma}(E - \mu). \quad (4.15)$$

Setzen wir in das Spektraltheorem (3.18) die Ein-Elektronen-Spektraldichte ein, so erhalten wir den Erwartungswert des Besetzungszahloperators $n_{i\sigma} = c_{i\sigma}^\dagger c_{i\sigma}$:

$$\langle n_{i\sigma} \rangle = \frac{1}{\hbar} \int_{-\infty}^{+\infty} dE f_-(E) S_{ii\sigma}(E - \mu). \quad (4.16)$$

Die Bandbesetzung oder Elektronendichte n , die für ein einfaches s-Band Werte im Bereich $0 \leq n \leq 2$ annimmt, können wir mit (4.16) und der Quasiteilchen-Zustandsdichte (4.15) wie folgt angeben:

$$n = \frac{1}{N} \sum_{i\sigma} \langle n_{i\sigma} \rangle = \sum_{\sigma} \int_{-\infty}^{+\infty} dE f_-(E) \rho_\sigma(E). \quad (4.17)$$

Es kann gezeigt werden, daß die Ein-Elektronen-Spektraldichte die gesamte Gleichgewichtsthermodynamik eines wechselwirkenden Systems beschreibt. Im Hinblick auf die spätere Diskussion wollen wir uns nur auf die Berechnung der inneren Energie des Ein-Band-Kondo-Gitter-Modells konzentrieren und verweisen für Details auf [43, 44]. Die innere Energie ist durch den Erwartungswert des Hamilton-Operators (4.1) definiert:

$$\langle H \rangle = \sum_{ij\sigma} T_{ij} \langle c_{i\sigma}^\dagger c_{j\sigma} \rangle - \frac{J}{2\hbar} \sum_{i\sigma} (z_\sigma \langle S_i^z n_{i\sigma} \rangle + \langle S_i^\sigma c_{i-\sigma}^\dagger c_{i\sigma} \rangle). \quad (4.18)$$

Die innere Energie $\langle H \rangle$ setzt sich aus den Beiträgen zur kinetischen Energie $\langle H_0 \rangle$ und potentiellen Energie $\langle H_{sf} \rangle$ zusammen. Der Beitrag zur kinetischen Energie kann mit Hilfe des Spektraltheorems (3.18) und der Spektraldichte $S_{ij\sigma}(E)$ leicht in einen einfachen Ausdruck umgeformt werden:

$$\langle H_0 \rangle = \sum_{ij\sigma} T_{ij} \langle c_{i\sigma}^\dagger c_{j\sigma} \rangle = \frac{1}{\hbar} \sum_{ij\sigma} T_{ij} \int_{-\infty}^{+\infty} dE f_-(E) S_{ji\sigma}(E - \mu). \quad (4.19)$$

Der Beitrag zur potentiellen Energie enthält Korrelationsfunktionen, die sich nicht ohne weiteres durch die Ein-Elektronen-Spektraldichte ausdrücken lassen. Wir können aber den Kommutator

$$[c_{i\sigma}^\dagger, H]_- = - \sum_l T_{li} c_{l\sigma}^\dagger + \frac{J}{2\hbar} (z_\sigma S_i^z c_{i\sigma}^\dagger + S_i^\sigma c_{i-\sigma}^\dagger) \quad (4.20)$$

dazu benutzen, die potentielle Energie $\langle H_{sf} \rangle$ in eine nützliche Form zu bringen. Nach Multiplikation der Gleichung (4.20) mit $c_{i\sigma}$ von rechts und anschließender Bildung des Erwartungswertes erhalten wir folgenden Zusammenhang:

$$\langle [c_{i\sigma}^+, H]_- c_{i\sigma} \rangle = - \sum_l T_{li} \langle c_{l\sigma}^+ c_{i\sigma} \rangle + \frac{J}{2\hbar} (z_\sigma \langle S_i^z c_{i\sigma}^+ c_{i\sigma} \rangle + \langle S_i^\sigma c_{i-\sigma}^+ c_{i\sigma} \rangle). \quad (4.21)$$

Der Vergleich von (4.21) mit der Definitionsgleichung (4.19) liefert für die potentielle Energie:

$$\langle H_{sf} \rangle = - \langle H_0 \rangle - \sum_{i\sigma} \langle [c_{i\sigma}^+, H]_- c_{i\sigma} \rangle. \quad (4.22)$$

Den zweiten Erwartungswert auf der rechten Seite von (4.22) können wir mit Hilfe der Bewegungsgleichung für Heisenberg-Operatoren (3.8) etwas umformen:

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t'} \langle c_{i\sigma}^+(t') c_{i\sigma}(t) \rangle \Big|_{t'=t} = \langle [c_{i\sigma}^+, H]_- c_{i\sigma} \rangle + \mu \langle n_{i\sigma} \rangle. \quad (4.23)$$

Die linke Seite der Gleichung (4.23) erhalten wir aus dem Spektraltheorem (3.18) mit $A = c_{i\sigma}(t)$ und $B = c_{i\sigma}^+(t')$ durch eine Differentiation nach t' und Gleichsetzen der Zeiten t' und t . Damit können wir für den Erwartungswert auf der rechten Seite von (4.22) schreiben:

$$\langle [c_{i\sigma}^+, H]_- c_{i\sigma} \rangle = - \frac{1}{\hbar} \int_{-\infty}^{+\infty} dE f_-(E) E S_{ii\sigma}(E - \mu). \quad (4.24)$$

Darin bezeichnet $f_-(E) = \left(e^{\beta(E-\mu)} + 1 \right)^{-1}$ die Fermi-Funktion.

Durch Einsetzen von (4.24) und (4.19) in die Gleichung (4.22) kann schließlich die potentielle Energie durch die Ein-Elektronen-Spektralldichte ausgedrückt werden:

$$\langle H_{sf} \rangle = \frac{1}{\hbar} \int_{-\infty}^{+\infty} dE f_-(E) \sum_{li\sigma} (E \delta_{li} - T_{li}) S_{il\sigma}(E - \mu). \quad (4.25)$$

Die innere Energie ergibt sich aus der Summe der Gleichungen (4.19) und (4.25) zu:

$$U = \langle H \rangle = \frac{1}{\hbar} \sum_{i\sigma} \int_{-\infty}^{+\infty} dE f_-(E) E S_{ii\sigma}(E - \mu). \quad (4.26)$$

Es sei hier erwähnt, daß die innere Energie nicht explizit von den Hüpfmatrixelementen T_{ij} abhängt. Das ist eine Besonderheit des Kondo-Gitter-Modells.

Zur Untersuchung des lokalisierten Spinsystems ist es sinnvoll, von der Spin-Spin-Green-Funktion [54] auszugehen:

$$D_{ij}^{(a)}(E) = \langle \langle S_i^+; e^{aS_j^z} S_j^- \rangle \rangle_E = -i \int_0^\infty dt e^{-\frac{i}{\hbar} E t} \langle [S_i^+(t), e^{aS_j^z} S_j^-(0)]_- \rangle, \quad (4.27)$$

wobei wir hier im Gegensatz zum elektronischen System die Kommutator-Green-Funktion verwendet haben. Die Pole der entsprechenden Greenschen Funktion im \mathbf{k} -Raum $D_{\mathbf{k}}^{(a)}(E)$ geben ähnlich wie im Fall des elektronischen Systems (4.2) die Anregungen im Spinsystem an. Diese Anregungen werden als Spinwellen oder Magnonen bezeichnet. Die magnonische Greensche Funktion erlaubt unter anderem die Bestimmung der Magnetisierung $\langle S^z \rangle$ im gesamten Temperaturbereich, so daß damit die Möglichkeit besteht, die Curie-Temperatur aus dieser Funktion zu bestimmen.

4.2 Exakte Resultate

Wir behandeln in diesem Abschnitt zwei Grenzfälle des Ein-Band-Kondo-Gitter-Modells, den *ferromagnetisch gesättigten Halbleiter* und den *atomaren Limes* oder auch Grenzfall des unendlichen schmalen Bandes. Dabei konzentrieren wir uns auf die Untersuchung der elektronischen Struktur mittels Ein-Elektronen-Green-Funktion. Der *ferromagnetisch gesättigte Halbleiter* kann auch als Eigenwertproblem [55, 48, 26, 56] formuliert und gelöst werden. Gleiches gilt für den *atomaren Limes*. Die Untersuchung mittels Greenscher Funktionen erleichtert den Vergleich mit anderen approximativen Lösungen, die auf Methoden der Greenschen Funktionen aufbauen.

4.2.1 Ferromagnetische Sättigung und $n = 0$

In der ferromagnetischen Sättigung ist das Untersystem der lokalisierten Spins vollständig ausgerichtet. Unter dieser Voraussetzung und der eines leeren Leitungsbandes können wir die Ein-Elektronen-Green-Funktion exakt angeben. Diese Situation ist bei den ferromagnetischen Isolatoren EuO und EuS bei $T = 0$ K anzutreffen und wird oft als Grenzfall des *ferromagnetisch gesättigten Halbleiters* [44, 4, 57] bezeichnet. Eine direkte Wechselwirkung der lokalisierten Spins miteinander durch einen *Superaustausch* werden wir der Einfachheit halber nicht betrachten. Sie stellt aber kein prinzipielles Hindernis dar, die exakte Lösung anzugeben.

Wir untersuchen hier die bereits eingeführte Bewegungsgleichung (4.3) der Ein-Elektronen-Green-Funktion. Die Bildung der Erwartungswerte in den Greenschen Funktionen wird hierbei mit dem Grundzustand $|0\rangle$ vorgenommen, der dem Elektronenvakuum (leeres Leitungsband ($n = 0$)) und Magnonenvakuum (ferromagnetische Sättigung) entspricht. Damit ergeben sich folgende Vereinfachungen der

höheren Greenschen Funktionen (4.5) und (4.6):

$$\Gamma_{ikj\sigma}(E) \longrightarrow \hbar S G_{kj\sigma}(E) \quad (4.28)$$

$$F_{ikj\uparrow}(E) \longrightarrow 0. \quad (4.29)$$

Wir setzen (4.28) und (4.29) in (4.4) ein und können mit der Definition (4.7) sofort die exakte Selbstenergie für die Spinprojektion $\sigma = \uparrow$ angeben:

$$M_{ij\uparrow}(E) = -\frac{1}{2}JS\delta_{ij}. \quad (4.30)$$

Für die Spinprojektion $\sigma = \downarrow$ ergibt sich folgende Gleichung für die Selbstenergie:

$$\sum_m M_{im\downarrow}(E) G_{mj\downarrow}(E) = \frac{1}{2}JS G_{ij\downarrow}(E) - \frac{1}{2\hbar}JF_{ii\downarrow}(E). \quad (4.31)$$

Hierbei ist zu beachten, daß die *Spinflipfunktion* $F_{ii\sigma}(E)$ für $\sigma = \downarrow$ nicht verschwindet, da ein \downarrow -Elektron seinen Spin mit dem antiparallel orientierten lokalisierten Spin austauschen kann. Deshalb benötigen wir eine weitere Bewegungsgleichung für die höhere Greensche Funktion $F_{ikj\downarrow}(E)$, um ein geschlossenes Gleichungssystem zu erhalten. Nach einigen zusätzlichen Umformungen (siehe Anhang A) erhalten wir folgende Bewegungsgleichung für die *Spinflipfunktion* $F_{ikj\downarrow}(E)$:

$$(E + \frac{1}{2}J(S - \delta_{ik}))F_{ikj\downarrow}(E) = \sum_m T_{km}F_{imj\downarrow}(E) - J\hbar S\delta_{ik}G_{ij\downarrow}(E). \quad (4.32)$$

Mit den im Anhang B angegebenen Fourier-Transformationen läßt sich Gleichung (4.32) nach einfachen Umformungen in folgende Form bringen:

$$(E + \frac{1}{2}JS - \varepsilon(\mathbf{k} - \mathbf{q}))F_{\mathbf{k}\mathbf{q}\downarrow}(E) = \frac{1}{2}J\frac{1}{N}\sum_{\mathbf{p}}F_{\mathbf{k}\mathbf{p}\downarrow}(E) - JS\frac{\hbar}{\sqrt{N}}G_{\mathbf{k}\downarrow}(E). \quad (4.33)$$

Gleichung (4.33) können wir nach der *Spinflipfunktion* umstellen und erhalten schließlich

$$\frac{1}{\sqrt{N}}\sum_{\mathbf{q}}F_{\mathbf{k}\mathbf{q}\downarrow}(E) = -\frac{JS G_{\mathbf{k}\uparrow}(E)}{1 - \frac{1}{2\hbar}J G_{\mathbf{k}\uparrow}(E)}G_{\mathbf{k}\downarrow}(E). \quad (4.34)$$

Wir haben in (4.34) die Definition der effektiven Ein-Elektronen-Green-Funktion für $\sigma = \uparrow$ verwendet:

$$G_{\mathbf{k}\uparrow}(E) = \frac{1}{N}\sum_{\mathbf{q}}\frac{\hbar}{E + \frac{1}{2}JS - \varepsilon(\mathbf{k} - \mathbf{q})}, \quad (4.35)$$

die nicht explizit vom Wellenzahlvektor \mathbf{k} abhängt. Daher können wir sie mit Hilfe der \mathbf{k} -summierten wechselwirkungsfreien Ein-Elektronen-Green-Funktion (4.10) wie folgt ausdrücken:

$$G_{\mathbf{k}\uparrow}(E) = \frac{1}{N} \sum_{\mathbf{p}} \frac{\hbar}{E + \frac{1}{2}JS - \varepsilon(\mathbf{p})} \equiv G_0(E + \frac{1}{2}JS). \quad (4.36)$$

Für die weitere Auswertung benötigen wir die Fourier-transformierte der Bewegungsgleichung (4.32):

$$(E - \frac{1}{2}JS - \varepsilon(\mathbf{k}))G_{\mathbf{k}\downarrow}(E) = \hbar + \frac{\frac{1}{2\hbar}J^2S G_0(E + \frac{1}{2}JS)}{1 - \frac{1}{2\hbar}JG_0(E + \frac{1}{2}JS)} G_{\mathbf{k}\downarrow}(E). \quad (4.37)$$

In Gleichung (4.37) sind (4.28) und (4.33) ausgenutzt worden. Einen expliziten Ausdruck für die Selbstenergie $M_{\mathbf{k}\downarrow}(E)$ erhalten wir durch Vergleich der Gleichung (4.37) mit der Dyson-Gleichung

$$G_{\mathbf{k}\downarrow}(E) = \frac{\hbar}{E - \varepsilon(\mathbf{k}) - M_{\mathbf{k}\downarrow}(E) + i0^+}. \quad (4.38)$$

Schließlich können wir zusammen mit (4.30) einen exakten Ausdruck für die Selbstenergie des Kondo-Gitter-Modells im Grenzfall der *ferromagnetischen Sättigung* und eines leeren Leitungsbandes angeben:

$$M_{\mathbf{k}\sigma}(E) = -\frac{1}{2}Jz_{\sigma}S + \delta_{\sigma\downarrow} \frac{\frac{1}{2\hbar}J^2S G_0(E + \frac{1}{2}JS)}{1 - \frac{1}{2\hbar}JG_0(E + \frac{1}{2}JS)} \equiv M_{\sigma}(E). \quad (4.39)$$

Die exakte Selbstenergie (4.39) erweist sich als \mathbf{k} -unabhängig, da wir den *Superaustausch* der Einfachheit halber nicht berücksichtigt haben.

Die Ein-Elektronen-Green-Funktion für diesen Spezialfall (*ferromagnetische Sättigung*, $n = 0$) ist die Fourier-transformierte der Gleichung (4.8), wobei jetzt für die Selbstenergie $M_{\mathbf{k}\sigma}(E)$ der exakte Ausdruck (4.39) eingesetzt wird:

$$G_{\mathbf{k}\sigma}(E) = \frac{\hbar}{E - \varepsilon(\mathbf{k}) - M_{\sigma}(E) + i0^+}. \quad (4.40)$$

Die aus (4.40) gewonnene Spektraldichte

$$S_{\mathbf{k}\uparrow}(E) = \hbar \delta(E + \frac{1}{2}JS - \varepsilon(\mathbf{k})) \quad (4.41)$$

besteht für $\sigma = \uparrow$ lediglich aus δ -Funktionen, die bei den Energien $\varepsilon(\mathbf{k}) - \frac{1}{2}JS$ lokalisiert sind. Die aus (4.41) resultierende Quasiteilchen-Zustandsdichte

$$\rho_{\uparrow}(E) = \frac{1}{N\hbar} \sum_{\mathbf{k}} S_{\mathbf{k}\uparrow}(E) = \rho_0(E + \frac{1}{2}JS) \quad (4.42)$$

behält die Gestalt der freien Bloch-Zustandsdichte $\rho_0(E)$, jedoch verschoben um den Energiebetrag $-\frac{1}{2}JS$. Diese Verschiebung wird durch den *Ising*-Term im Wechselwirkungsoperator (2.13) hervorgerufen, denn der *Spinflip*-Term ist für ein \uparrow -Elektron nicht aktiv. Dies ist mit der Tatsache verbunden, daß ein \uparrow -Elektron seinen Spin mit den lokalisierten Spins nicht austauschen kann. Im Gegensatz dazu ist das Spektrum eines \downarrow -Elektrons deutlich komplexer, denn ein \downarrow -Elektron kann auf zwei unterschiedliche Weisen mit den antiparallel lokalisierten Spins wechselwirken. Ein \downarrow -Elektron kann ein Magnon emittieren und dabei wird das angeregte Elektron zu einem \uparrow -Elektron. Dieser Prozeß führt im Spektrum zu einem breiten Streuanteil, der energetisch im selben Bereich wie das \uparrow -Spektrum liegt. Die zweite Möglichkeit wird durch wiederholte Emission und Reabsorption eines Magnons realisiert, die dazu führt, daß das Elektron beim Propagieren durch das Gitter von einer *virtuellen Wolke* von Magnonen begleitet wird. Das dazu gehörige Quasiteilchen wird als *magnetisches Polaron* bezeichnet.

Außerhalb des Streuspektrums besitzt das *magnetische Polaron* unendliche Lebensdauer. Im Streubereich zerfällt es in ein \uparrow -Elektron und ein Magnon. Abbildung 4.1 zeigt die Spektraldichte eines \downarrow -Elektrons für verschiedene Punk-

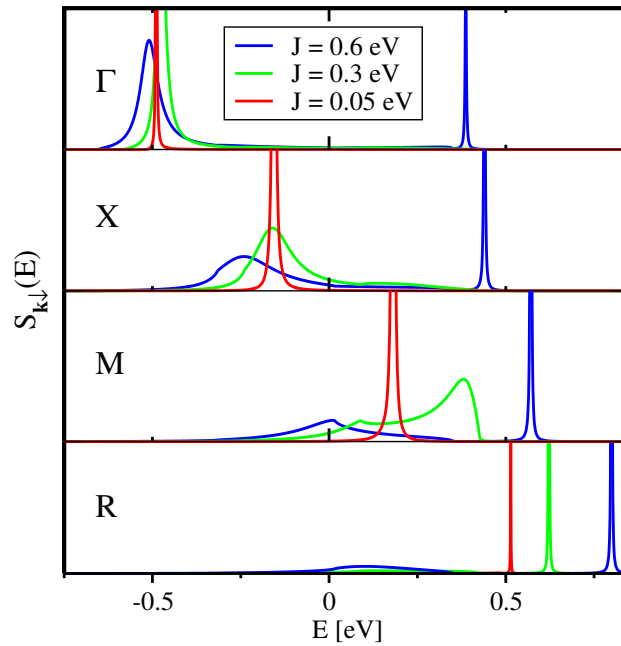


Abbildung 4.1: \downarrow -Spektraldichte als Funktion der Energie für verschiedene Punkte in der Brillouin-Zone und verschiedene Kopplungskonstanten J . Parameter: $S = \frac{1}{2}$, $W = 1$ eV, einfach kubisches Gitter [1, 2, 3].

te in der Brillouin-Zone eines einfach kubischen Gitters. Am Γ -Punkt und für $J = 0.05$ eV beobachten wir eine δ -förmige Quasiteilchenanregung, die der Ener-

gie $\varepsilon(\mathbf{k}) + \frac{1}{2}JS$ entspricht, denn für schwache Kopplung dominiert der erste Beitrag $\frac{1}{2}JS$ in der Selbstenergie (4.39). Für eine stärkere Kopplung $J = 0.6$ eV verbreitert sich das ursprüngliche δ -förmige Quasiteilchen zu einem Lorentz-förmigen Peak und im oberen Teil des Quasiteilchenspektrums tritt ein schmaler Peak hervor, das *magnetische Polaron*. Wir haben hier eine künstliche Verbreiterung der δ -Peaks vorgenommen, um eine bessere Darstellung zu erreichen. Das *magnetische Polaron* stellt demzufolge für die betrachtete Kopplung $J = 0.6$ eV ein Quasiteilchen mit unendlicher Lebensdauer dar.

In Abbildung 4.2 ist die Quasiteilchen-Bandstruktur sowohl für positive ($J > 0$) als auch für negative ($J < 0$) Kopplung dargestellt. Für die mittlere effektive Kopp-

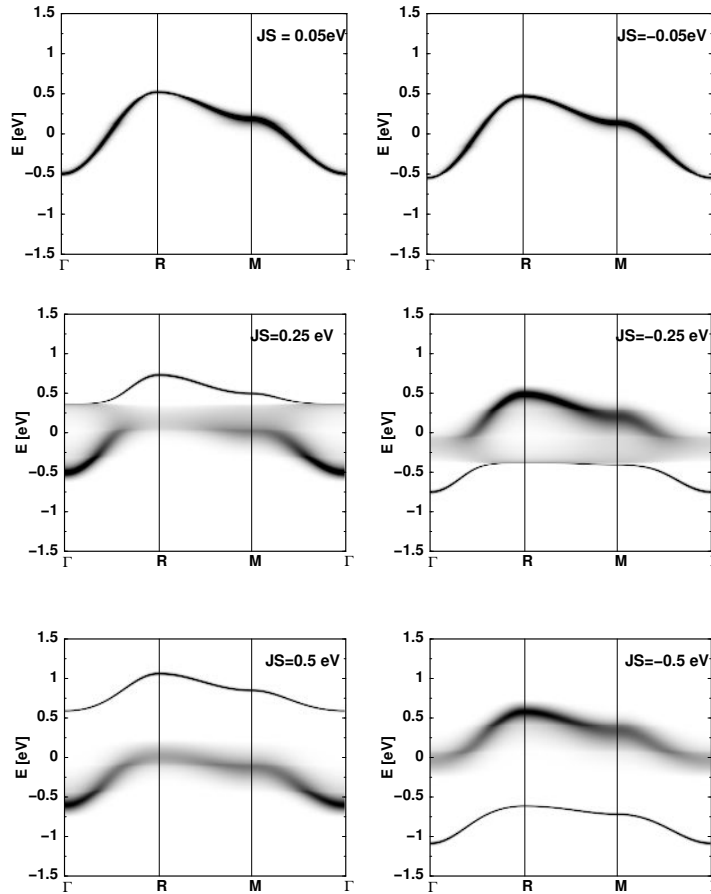


Abbildung 4.2: \downarrow -Spektraldichte (Quasiteilchen-Bandstruktur) für $S = \frac{1}{2}$, Bandbreite $W = 1$ eV und verschiedene effektive Kopplungen JS entlang der Hochsymmetrierichtungen in der ersten Brillouin-Zone. Linke Spalte für $J > 0$, rechte Spalte für $J < 0$ [1, 3].

lung $JS = 0.25$ eV und um den Γ -Punkt zerfällt das *magnetische Polaron* in ein

\uparrow -Elektron und ein Magnon. Im Gegensatz dazu ist das *magnetische Polaron* für $J < 0$ am Γ -Punkt ein stabiles Quasiteilchen.

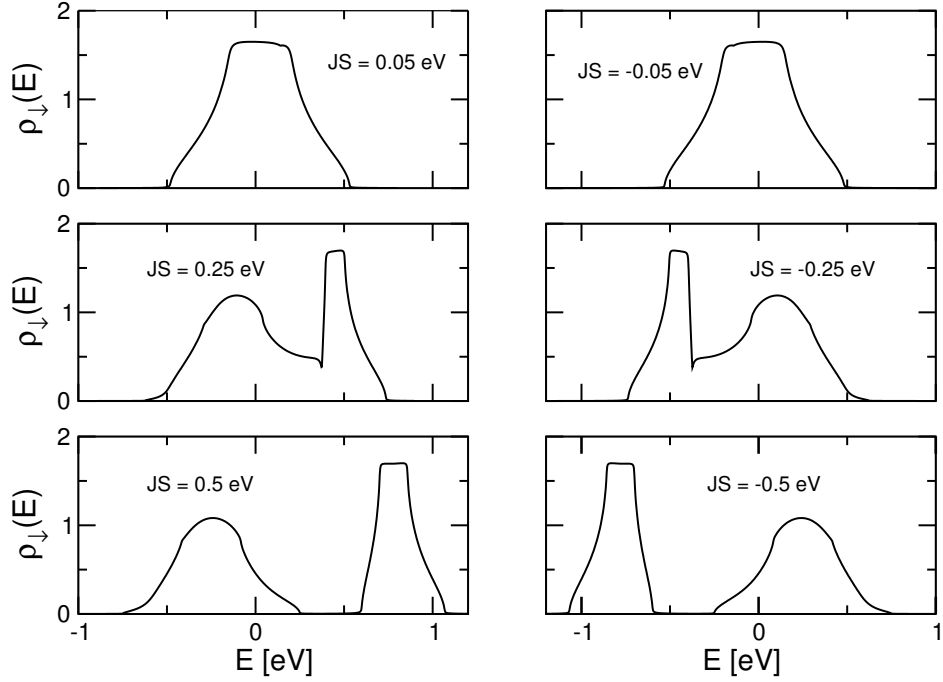


Abbildung 4.3: Quasiteilchen-Zustandsdichte für $\sigma = \downarrow$ in Abhängigkeit von der Energie für verschiedene effektive Kopplungen JS . Parameter: $S = \frac{1}{2}$, $W = 1$ eV, einfach kubisches Gitter.

Die zur Spektraldichte 4.2 entsprechende \downarrow -Quasiteilchen-Zustandsdichte ist in Abbildung 4.3 dargestellt. Für schwache Kopplung behält die Quasiteilchen-Zustandsdichte im wesentlichen die Form der freien Bloch-Zustandsdichte bei. Dagegen sind im Bereich mittlerer Kopplung ($JS = 0.25$ eV) starke Deformationen und die Bildung zweier Quasiteilchen-Bänder zu sehen. Schließlich beobachten wir für $JS = 0.5$ eV zwei Quasiteilchen-Bänder, deren Ursprung in den oben diskutierten elementaren Prozessen zu finden ist. Das obere Band ordnen wir dem *magnetischen Polaron* und das untere Band dem Streuspektrum zu. Für negative Austauschkonstanten gelten ähnliche Verhältnisse wie in Abbildung 4.2, wo das *magnetische Polaron* den unteren Energiebereich des Spektrums einnimmt.

4.2.2 Der atomare Limes

Der Grenzfall des *atomaren Limes* wird durch das Verschwinden der Banddispersion $\varepsilon(\mathbf{k})$ charakterisiert. Dadurch geht das ursprüngliche Band $\varepsilon(\mathbf{k})$ in ein entartetes Niveau T_0 über. In unserem Fall läßt sich diese Bedingung in (4.1) durch

$T_{ij} \longrightarrow \delta_{ij}T_0$ realisieren. Der Hamilton-Operator lautet dann mit einem zusätzlichen Hubbard-Term (2.7) wie folgt:

$$H = \sum_{i\sigma} T_0 c_{i\sigma}^+ c_{i\sigma} - \frac{J}{2\hbar} \sum_{i\sigma} (z_\sigma S_i^z n_{i\sigma} + S_i^\sigma c_{i-\sigma}^+ c_{i\sigma}) + \frac{U}{2} \sum_{i\sigma} n_{i-\sigma} n_{i\sigma}. \quad (4.43)$$

Die Hubbard-Wechselwirkung in (4.43) gestattet die unmittelbare Identifikation der Ein-Teilchen-Anregungen, die im Zusammenhang mit der doppelten Besetzung stehen. Die Berechnung der Ein-Elektronen-Green-Funktion kann auf die folgende verallgemeinerte Greensche Funktion

$$G_{ij\sigma}^{\alpha\beta}(E) = \langle \langle d_{i\alpha,\sigma}; d_{j\beta,\sigma}^+ \rangle \rangle_E \quad (4.44)$$

zurückgeführt werden, die sich aus dem Operator

$$d_{i\alpha,\sigma} = n_{i-\sigma}^\alpha c_{i\sigma} = \begin{cases} n_{i-\sigma} c_{i\sigma} & : \alpha = + \\ (1 - n_{i-\sigma}) c_{i\sigma} & : \alpha = - \end{cases} \quad (4.45)$$

zusammensetzt. Die Ein-Elektronen-Green-Funktion läßt sich aus der verallgemeinerten Greenschen Funktion durch Summation über α und β gewinnen:

$$G_{ij\sigma}(E) = \sum_{\alpha\beta} G_{ij\sigma}^{\alpha\beta}(E). \quad (4.46)$$

Die Struktur des Operator $d_{i\alpha,\sigma}$ führt zu deutlich komplizierteren Kommutatorrelationen:

$$[d_{i\alpha,\sigma}, d_{j\beta,\sigma}^+]_+ = \delta_{ij}^{\alpha\beta} n_{i-\sigma}^\alpha. \quad (4.47)$$

Die Bewegungsgleichung der Greenschen Funktion (4.44) koppelt an die höhere Greensche Funktion $D_{ij\sigma}^{\alpha\beta}(E)$:

$$D_{ij\sigma}^{\alpha\beta} = \langle \langle z_\sigma S_i^z d_{i\alpha,\sigma} + S_i^{-\sigma} d_{i\alpha,-\sigma}; d_{j\beta,\sigma}^+ \rangle \rangle_E. \quad (4.48)$$

Deren Bewegungsgleichung führt nicht auf weitere höhere Greensche Funktionen, so daß wir zunächst ein geschlossenes Gleichungssystem erhalten:

$$(E + \mu - T_0 - U_\alpha) G_{ij\sigma}^{\alpha\beta}(E) = \hbar \delta_{ij}^{\alpha\beta} \langle n_{i-\sigma}^\alpha \rangle - \frac{1}{2\hbar} J D_{ij\sigma}^{\alpha\beta}(E) \quad (4.49)$$

$$\begin{aligned} (E + \mu - T_0 - U_\alpha + \alpha \frac{J}{2}) D_{ij\sigma}^{\alpha\beta}(E) &= \hbar^2 \delta_{ij}^{\alpha\beta} \Delta_{i-\sigma}^\alpha - \\ &\quad - \frac{\hbar}{2} J S(S+1) G_{ij\sigma}^{\alpha\beta}(E). \end{aligned} \quad (4.50)$$

Die Inhomogenität in (4.50) bezeichnet die gemischte Korrelationsfunktion:

$$\hbar \Delta_{i-\sigma}^\alpha = z_\sigma \langle S_i^z n_{i-\sigma}^\alpha \rangle + \alpha \langle S_i^{-\sigma} c_{i-\sigma} c_{i\sigma}^+ \rangle. \quad (4.51)$$

Für die Wechselwirkungskonstante U_α gilt

$$U_\alpha = \begin{cases} U & \text{für } \alpha = + \\ 0 & \text{für } \alpha = - \end{cases}. \quad (4.52)$$

Für die uns interessierende Greensche Funktion $G_{ij\sigma}^{\alpha\beta}(E)$ erhalten wir folgenden Ausdruck als Lösung des Gleichungssystems (4.49)

$$G_{ij\sigma}^{\alpha\beta}(E) = \frac{-\frac{1}{2}J\hbar\Delta_{-\sigma}^\alpha + \hbar(E + \mu - T_0 - U_\alpha + \alpha\frac{1}{2}J)\langle n_{i-\sigma}^\alpha \rangle}{(E + \mu - T_0 - U_\alpha + \alpha\frac{1}{2}J)(E + \mu - T_0 - U_\alpha) - \frac{1}{4}J^2S(S+1)}\delta_{ij}^{\alpha\beta}. \quad (4.53)$$

Aus der Lösung (4.53) können wir für die Ein-Elektronen-Green-Funktion folgende Struktur ablesen:

$$G_{ii\sigma}(E) = G_{ii\sigma}^{--}(E) + G_{ii\sigma}^{++}(E). \quad (4.54)$$

Danach setzt sich die Ein-Elektronen-Green-Funktion aus zwei Anteilen zusammen. $G_{ii\sigma}^{--}(E)$ beschreibt leere Gitterplätze und $G_{ii\sigma}^{++}(E)$ doppelt besetzte Gitterplätze. Die Ein-Teilchen-Anregungsenergien sind mit den Polen der verallgemeinerten Greenschen Funktion $G_{ij\sigma}^{\alpha\beta}(E)$

$$E_{1\alpha} = T_0 - \mu + U_\alpha + \alpha\frac{1}{2}JS; \quad E_{2\alpha} = T_0 - \mu + U_\alpha - \alpha\frac{1}{2}J(S+1) \quad (4.55)$$

identisch. Mit den dazugehörigen spektralen Gewichten

$$A_{1\alpha,\sigma} = \hbar \frac{(S+1)\langle n_{i-\sigma}^\alpha \rangle - \Delta_{i-\sigma}^\alpha}{2S+1}, \quad A_{2\alpha,\sigma} = \hbar \frac{S\langle n_{i-\sigma}^\alpha \rangle + \Delta_{i-\sigma}^\alpha}{2S+1} \quad (4.56)$$

und der Definition (4.46) lautet die Ein-Elektronen-Green-Funktion wie folgt:

$$G_{ii\sigma}(E) = \sum_{\alpha,p=1,2} \frac{A_{p\alpha,\sigma}}{E + \mu - E_{p\alpha} + i0^+}. \quad (4.57)$$

Wir erkennen aus (4.55), daß das ursprünglich entartete Niveau T_0 aufgrund der Austauschwechselwirkung J in vier Niveaus aufspaltet. Die energetischen Positionen dieser Niveaus sind durch die Pole $E_{p\alpha,\sigma}$ der Ein-Elektronen-Green-Funktion gegeben, die die möglichen Anregungsenergien des Systems bestimmen. Die Anregungsenergien sind in diesem Spezialfall unabhängig von der Temperatur T und der Elektronendichte n . Pole mit $\alpha = +$ geben die Anregungsenergien an, wenn an einem Gitterplatz ein weiteres Elektron vorhanden ist. Dies ist durch das Auftreten der Coulomb-Wechselwirkung in (4.55) zu erkennen. Pole mit $\alpha = -$ sind mit dem Hinzufügen eines Elektrons an einen leeren Gitterplatz verbunden.

Die Berechnung der Korrelationsfunktionen, die in den Gewichten der Greenschen Funktionen auftreten, kann mit Hilfe des Spektraltheorems (3.18) bewältigt werden. Für die spinabhängige mittlere Besetzungszahl $\langle n_{i\sigma} \rangle$ liefert die Anwendung des Spektraltheorems mit (4.57) den einfachen Ausdruck:

$$\langle n_{i\sigma} \rangle = \frac{1}{\hbar} \sum_{p\alpha} \frac{A_{p\alpha,\sigma}}{e^{\beta(E_{p\alpha}-\mu)} + 1}. \quad (4.58)$$

Zur Bestimmung der Korrelationsfunktion $\Delta_{i\sigma}^\alpha$ ist jedoch folgende Vorbetrachtung nötig. Da die zwei Korrelationsfunktionen für $\alpha = +$ und $\alpha = -$ nicht unabhängig voneinander sind, genügt es, $\Delta_{i\sigma}^+$ zu bestimmen, denn es gilt $\hbar\Delta_{i\sigma}^+ = z_\sigma \langle S_i^z \rangle - \hbar\Delta_{i\sigma}^-$. Die Korrelationsfunktion ist in diesem Fall durch die spektralen Gewichte der Greenschen Funktion (4.48) festgelegt:

$$\Delta_{i\sigma}^+ = \frac{1}{\hbar^2} \sum_{p\alpha} \frac{B_{p\alpha,\sigma}}{e^{\beta(E_{p\alpha}-\mu)} + 1}. \quad (4.59)$$

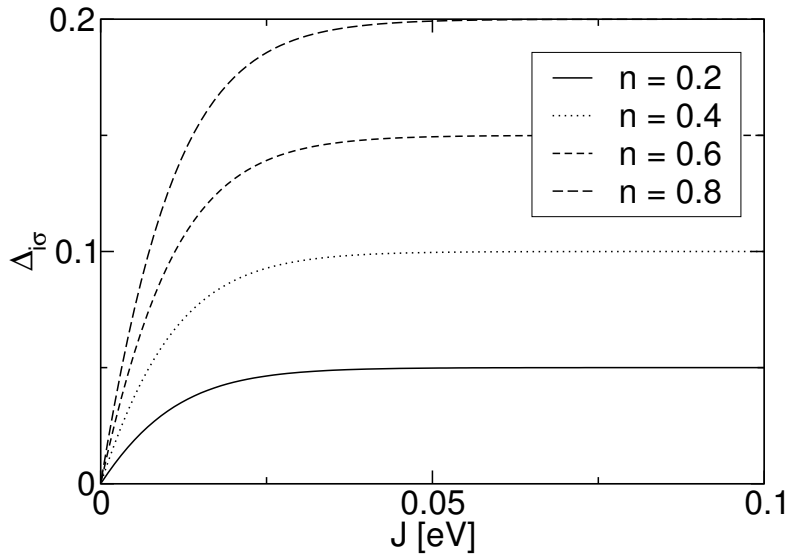


Abbildung 4.4: Korrelationsfunktion $\Delta_{i\sigma}^+$ in Abhängigkeit von der Kopplungskonstanten J für verschiedene Besetzungen n . Temperatur $T = 100$ K. Für die Magnetisierung haben wir $\langle S_i^z \rangle = 0$ angenommen.

Damit sind alle Korrelationsfunktionen bis auf die Magnetisierung $\langle S_i^z \rangle$ bestimmt, die zur Berechnung der Ein-Elektronen-Green-Funktion benötigt werden. Wir können uns einen Eindruck über den Verlauf der Korrelationsfunktion $\Delta_{i\sigma}^+$ verschaffen, wenn wir $\langle S_i^z \rangle$ als Parameter betrachten und seinen Wert vorgeben. In

Abbildung 4.4 ist die Korrelationsfunktion $\Delta_{i\sigma}^+$ in Abhängigkeit von der Kopplungskonstanten J dargestellt. Bei einer vorgegebenen Elektronendichte n ist für den Bereich sehr schwacher Kopplung ein starkes Ansteigen dieser Korrelationsfunktion zu beobachten. Daran schließt sich bereits ab $J = 0.05$ eV ein Bereich mit vollständiger Sättigung an.

4.3 Modellrechnungen

Im allgemeinen ist das Vielteilchenproblem, das der Hamilton-Operator (2.13) beschreibt, nicht exakt lösbar. In diesem Kapitel werden wir ein Näherungsverfahren vorstellen, das eine nichtstörungstheoretische, approximative Lösung des Kondo-Gitter-Modells gestattet. Hierfür werden wir uns an den bereits im Abschnitt 4.2 behandelten exakten Grenzfällen des *magnetischen Polarons* und des *atomaren Limes* orientieren. Die für das elektronische System resultierende Selbstenergie enthält neben den gemischten Korrelationsfunktionen, die aus Fermi- und Spinoperatoren aufgebaut sind, auch reine Spinkorrelationsfunktionen, die nicht aus der Ein-Elektronen-Green-Funktion berechenbar sind. Zur Bestimmung der reinen Spinkorrelationsfunktionen werden wir durch Bildung des Erwartungswertes über die elektronischen Freiheitsgrade den Wechselwirkungsterm H_{sf} des Kondo-Gitter Modells in einen effektiven Hamilton-Operator vom Heisenberg-Typ überführen [4, 5]. Es wird sich herausstellen, daß die effektiven Austauschintegrale des effektiven Heisenberg-Modells Funktionale der elektronischen Selbstenergie sind.

4.3.1 Elektronische Selbstenergie

Zur Bestimmung der elektronischen Selbstenergie benötigen wir die Bewegungsgleichung (4.3) der Ein-Elektronen-Green-Funktion:

$$\sum_m ((E + \mu)\delta_{im} - T_{im}) G_{mj\sigma}(E) = \hbar\delta_{ij} + \langle\langle [c_{i\sigma}, H_{sf}]_-; c_{j\sigma}^+ \rangle\rangle_E.$$

Der Wechselwirkungsterm H_{sf} im Kondo-Gitter-Modell führt zu höheren Green-schen Funktionen, die wir bereits im Abschnitt 4.2 eingeführt haben. Diese bestimmen ihrerseits die elektronische Selbstenergie $M_{il\sigma}(E)$ (siehe Gleichungen (4.7) und (4.4)) durch

$$\langle\langle [c_{i\sigma}, H_{sf}]_-; c_{j\sigma}^+ \rangle\rangle_E = \sum_l M_{il\sigma}(E) \langle\langle c_{l\sigma}; c_{j\sigma}^+ \rangle\rangle_E.$$

Um das weitere Vorgehen exemplarisch zu erläutern, stellen wir die Bewegungsgleichung der höheren Greenschen Funktion $F_{ikj\sigma}(E) = \langle\langle S_i^{-\sigma} c_{k-\sigma}; c_{j\sigma}^+ \rangle\rangle_E$ auf:

$$\sum_l ((E + \mu)\delta_{kl} - T_{kl}) F_{ilj\sigma}(E) = \langle\langle S_i^{-\sigma} [c_{k-\sigma}, H_{sf}]_-; c_{j\sigma}^+ \rangle\rangle_E + \langle\langle [S_i^{-\sigma}, H_{sf}]_- c_{k-\sigma}; c_{j\sigma}^+ \rangle\rangle_E. \quad (4.60)$$

Die Kommutatoren auf der rechten Seite der Gleichung (4.60) führen, wie bereits im Kapitel 3 erwähnt, zu höheren Greenschen Funktionen. Der erste Term auf der rechten Seite in (4.60) kann wie folgt verallgemeinert werden: $\langle\langle A_i [c_{k\sigma}, H_{sf}]_-; c_{j\sigma}^+ \rangle\rangle_E$, wobei A_i für einen Spinoperator steht, der in diesem Spezialfall mit dem Leiteroperator $S_i^{-\sigma}$ identisch ist. Für die Entkopplung der höheren Greenschen Funktionen führen wir die Unterscheidung in nichtdiagonale ($i \neq k$) und diagonale ($i = k$) Anteile ein. Den nichtdiagonalen Anteil entkoppeln wir gemäß [58, 4]:

$$\langle\langle A_i [c_{k\sigma}, H_{sf}]_-; c_{j\sigma}^+ \rangle\rangle_E \approx \sum_l M_{kl\sigma}(E) \langle\langle A_l c_{l\sigma}; c_{j\sigma}^+ \rangle\rangle_E. \quad (4.61)$$

Aus der Definition der Selbstenergie (4.7) wird deutlich, daß die darin enthaltenen Greenschen Funktionen die gleiche Polstruktur besitzen. Mögliche Unterschiede in den spektralen Gewichten werden durch die Selbstenergie berücksichtigt. Entsprechend können wir für die höheren Greenschen Funktionen $\langle\langle S_i^{-\sigma} [c_{k-\sigma}, H_{sf}]_-; c_{j\sigma}^+ \rangle\rangle_E$ und $\langle\langle S_i^{-\sigma} c_{k-\sigma}; c_{j\sigma}^+ \rangle\rangle_E$ argumentieren. Der Operator $S_i^{-\sigma}$ sorgt dafür, daß nur solche Ein-Teilchen-Anregungen auftreten, die von einem *Spinflip* begleitet werden. Für die betrachtete Greensche Funktion erhalten wir mit der Vorschrift (4.61):

$$\langle\langle S_i^{-\sigma} [c_{k-\sigma}, H_{sf}]_-; c_{j\sigma}^+ \rangle\rangle_E = \sum_l M_{kl-\sigma}(E) F_{ilj\sigma}(E). \quad (4.62)$$

Um jedoch starke Korrelationseffekte zu berücksichtigen, werden wir die diagonalen Greenschen Funktionen $\langle\langle A_i [c_{i\sigma}, H_{sf}]_-; c_{j\sigma}^+ \rangle\rangle_E$ als Linearkombination der bereits eingeführten Greenschen Funktionen $G_{ij\sigma}(E)$, $\Gamma_{ij\sigma}(E)$ und $F_{ij\sigma}(E)$ darstellen:

$$\langle\langle A_i [c_{i\sigma}, H_{sf}]_-; c_{j\sigma}^+ \rangle\rangle_E = \alpha_\sigma G_{ij\sigma}(E) + \beta_\sigma \Gamma_{ij\sigma}(E) + \gamma_\sigma F_{ij\sigma}(E). \quad (4.63)$$

Dieser Ansatz ist so konstruiert, daß möglichst viele bekannte Grenzfälle (*atomarer Limes*, *ferromagnetische Sättigung* $\langle S^z \rangle = \hbar S$, leeres Band $n = 0$, volles Band $n = 2, \dots$) des Kondo-Gitter-Modells erfüllt werden. Die unbekannten Koeffizienten α_σ , β_σ und γ_σ bestimmen wir mit Hilfe der Spektralmomente der im

Ansatz enthaltenen Greenschen Funktionen. Dieses Vorgehen wird auf alle Greenschen Funktionen angewendet, die sich nicht exakt auf bereits bekannte Greensche Funktionen zurückführen lassen. Schließlich erhalten wir eine implizite Bestimmungsgleichung für die elektronische Selbstenergie $M_{\mathbf{k}\sigma}(E)$, deren vollständige Herleitung im Anhang C zu finden ist:

$$M_{\mathbf{k}\sigma}(E) = -\frac{1}{2\hbar}Jz_{\sigma}\langle S^z \rangle + \frac{1}{4\hbar^2}J^2D_{\mathbf{k}\sigma}(E, J). \quad (4.64)$$

Diese Methode kann als eine nichtstörungstheoretische Entkopplungsmethode¹ angesehen werden, die zwischen bekannten exakten Grenzfällen interpoliert. In den Arbeiten [4, 59, 60, 61] wurde diese Methode auf spezielle Probleme im Zusammenhang mit dem Kondo-Gitter-Modell angewandt.

Der erste, energieunabhängige Term beschreibt den Einfluß der lokalisierten Spins auf die Leitungselektronen in erster Ordnung in J . Die energieabhängige komplexe Funktion $D_{\mathbf{k}\sigma}(E, J)$ berücksichtigt unelastische Streuprozesse höherer Ordnung, die der Selbstenergie eine charakteristische Energieabhängigkeit verleihen. $D_{\mathbf{k}\sigma}(E, J)$ ist ein Funktional der Selbstenergie $M_{\mathbf{k}\sigma}(E)$ und enthält sowohl gemischte Korrelationsfunktionen $\Delta_{\sigma} = \langle S_i^z n_{i\sigma} \rangle$ und $\gamma_{\sigma} = \langle S_i^{-\sigma} c_{i\sigma}^+ c_{i-\sigma} \rangle$ als auch reine Spinkorrelationsfunktionen $\langle S_i^z \rangle$, $\langle S_i^{\pm} S_i^{\mp} \rangle$ und $\langle (S_i^z)^2 \rangle$. Die gemischten Korrelationsfunktionen können wir mit Hilfe des Spektraltheorems (3.18) aus den entsprechenden Greenschen Funktionen $\Gamma_{ikj\sigma}(E)$ und $F_{ikj\sigma}(E)$ bestimmen:

$$\Delta_{\sigma} = -\frac{1}{\hbar\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} dE f_{-}(E) \text{Im} \Gamma_{iii\sigma}(E - \mu), \quad (4.65)$$

$$\gamma_{\sigma} = -\frac{1}{\hbar\pi} \int_{-\infty}^{+\infty} dE f_{-}(E) \text{Im} F_{iii\sigma}(E - \mu). \quad (4.66)$$

Um ein geschlossenes Gleichungssystem zu erhalten, müssen die in (4.64) auftretenden reinen Spinkorrelationsfunktionen vom Typ $\langle S_i^z \rangle$, $\langle S_i^{\pm} S_i^{\mp} \rangle$, $\langle (S_i^z)^2 \rangle$, ... als Funktionale der Selbstenergie $M_{\mathbf{k}\sigma}(E)$ ausdrücken werden. Da das Kondo-Gitter-Modell (2.13) keine explizite direkte Kopplung zwischen den lokalisierten Spins enthält, kann eine endliche Kopplung zwischen den lokalisierten Spins nur von indirekter Natur sein. Deshalb wird die Wechselwirkung (2.13) auf ein effektives Heisenberg-Modell abgebildet, um die reinen Spinkorrelationsfunktionen zu erhalten. Als Ergebnis dieser Abbildung sind die effektiven Austauschintegrale im effektiven Heisenberg-Modell Funktionale der elektronischen Selbstenergie $M_{\mathbf{k}\sigma}(E)$.

¹Die Bezeichnung *moment conserving decoupling approach* (MCDA) haben wir in [1] eingeführt.

4.3.2 Modifizierte RKKY-Wechselwirkung

Zur Berechnung der reinen Spinkorrelationsfunktionen, die in dem Selbstenergiedruck (4.64) erscheinen, wird durch Bildung des Erwartungswertes über die elektronischen Freiheitsgrade ein effektiver Heisenberg-Hamilton-Operator konstruiert [4, 5]:

$$H_f = - \sum_{ij} \hat{J}_{ij} \mathbf{S}_i \cdot \mathbf{S}_j. \quad (4.67)$$

Wir können somit auf bekannte, für das Heisenberg-Modell entwickelte Näherungsverfahren zur Bestimmung der Spinkorrelationsfunktionen zurückgreifen. Zur Erläuterung der Erwartungswertbildung werden wir in diesem Abschnitt die Fourier-transformierte Form der Wechselwirkung (2.13) benutzen:

$$H_{sf} = - \frac{J}{\hbar N} \sum_{i\sigma\sigma'} \sum_{\mathbf{k}\mathbf{q}} e^{-i\mathbf{q} \cdot \mathbf{R}_i} (\mathbf{S}_i \cdot \boldsymbol{\sigma})_{\sigma\sigma'} c_{\mathbf{k}+\mathbf{q}\sigma}^+ c_{\mathbf{k}\sigma'}. \quad (4.68)$$

Den Erwartungswert bilden wir ausschließlich im elektronischen Teil des Systems gemäß

$$\langle c_{\mathbf{k}+\mathbf{q}\sigma}^+ c_{\mathbf{k}\sigma'} \rangle^{(s)} = \frac{1}{\Xi'} \text{Sp}(e^{-\beta H'} c_{\mathbf{k}+\mathbf{q}\sigma}^+ c_{\mathbf{k}\sigma'}). \quad (4.69)$$

H' besitzt die gleiche Struktur wie der Hamilton-Operator des Kondo-Gitter-Modells mit der Einschränkung, daß die lokalisierten Spins bei der Bildung des Erwartungswertes als c-Zahlen betrachtet werden. Demzufolge bleiben die lokalisierten Spins bei der Mittelung unberührt. Ξ' ist die entsprechende großkanonische Zustandssumme. Wir können letztlich folgende Abbildungsvorschrift angeben:

$$\langle H_{sf} \rangle^{(s)} \implies H_f = - \frac{J}{\hbar N} \sum_{i\sigma\sigma'} \sum_{\mathbf{k}\mathbf{q}} e^{-i\mathbf{q} \cdot \mathbf{R}_i} (\mathbf{S}_i \cdot \boldsymbol{\sigma})_{\sigma\sigma'} \langle c_{\mathbf{k}+\mathbf{q}\sigma}^+ c_{\mathbf{k}\sigma'} \rangle^{(s)}. \quad (4.70)$$

Es bleibt nun die Aufgabe, die Korrelationsfunktion $\langle c_{\mathbf{k}\sigma}^+ c_{\mathbf{k}+\mathbf{q}\sigma'} \rangle^{(s)}$ zu bestimmen. Dafür definieren wir die effektive Greensche Funktion:

$$G_{\mathbf{k}\sigma, \mathbf{k}+\mathbf{q}\sigma'}(E) = \langle \langle c_{\mathbf{k}\sigma}; c_{\mathbf{k}+\mathbf{q}\sigma'}^+ \rangle \rangle_E^{(s)}, \quad (4.71)$$

wobei die Bildung des Erwartungswertes in (4.71) in dem eingeschränkten Sinn, wie es in (4.69) angegeben wurde, zu verstehen ist. Es ist zweckmäßig, jeweils die Bewegungsgleichungen mit dem aktiven Operator $c_{\mathbf{k}\sigma}$

$$(E - \varepsilon(\mathbf{k})) G_{\mathbf{k}\sigma, \mathbf{k}+\mathbf{q}\sigma'}(E) = \hbar \delta_{\mathbf{q},0} \delta_{\sigma\sigma'} - \frac{J}{\hbar N} \sum_{i\mathbf{k}'\sigma''} e^{-i(\mathbf{k}-\mathbf{k}') \cdot \mathbf{R}_i} (\mathbf{S}_i \cdot \boldsymbol{\sigma})_{\sigma\sigma''} G_{\mathbf{k}'\sigma'', \mathbf{k}+\mathbf{q}\sigma'}(E) \quad (4.72)$$

und $c_{\mathbf{k}+\mathbf{q}\sigma'}^+$

$$(E - \varepsilon(\mathbf{k} + \mathbf{q})) G_{\mathbf{k}\sigma, \mathbf{k}+\mathbf{q}\sigma'}(E) = \hbar \delta_{\mathbf{q},0} \delta_{\sigma\sigma'} - \frac{J}{\hbar N} \sum_{i\mathbf{k}'\sigma''} e^{-i(\mathbf{k}' - (\mathbf{k}+\mathbf{q})) \cdot \mathbf{R}_i} (\mathbf{S}_i \cdot \boldsymbol{\sigma})_{\sigma''\sigma'} G_{\mathbf{k}\sigma, \mathbf{k}'\sigma''}(E). \quad (4.73)$$

zu einer Gleichung zu kombinieren, die uns die Bestimmung der effektiven Greenschen Funktion $G_{\mathbf{k}\sigma, \mathbf{k}+\mathbf{q}\sigma'}(E)$ gestattet:

$$\begin{aligned} G_{\mathbf{k}\sigma, \mathbf{k}+\mathbf{q}\sigma'}(E) &= \delta_{\mathbf{q},0} \delta_{\sigma\sigma'} G_{\mathbf{k}}^{(0)}(E) - \\ &- \frac{J}{2N\hbar^2} \sum_{i\sigma''\mathbf{k}'} e^{i(\mathbf{k}-\mathbf{k}') \cdot \mathbf{R}_i} G_{\mathbf{k}}^{(0)}(E) (\mathbf{S}_i \cdot \boldsymbol{\sigma})_{\sigma\sigma''} G_{\mathbf{k}'\sigma'', \mathbf{k}+\mathbf{q}\sigma'}(E) \\ &- \frac{J}{2N\hbar^2} \sum_{i\sigma''\mathbf{k}'} e^{i(\mathbf{k}' - (\mathbf{k}+\mathbf{q})) \cdot \mathbf{R}_i} G_{\mathbf{k}\sigma, \mathbf{k}'\sigma''}(E) (\mathbf{S}_i \cdot \boldsymbol{\sigma})_{\sigma''\sigma'} G_{\mathbf{k}+\mathbf{q}}^{(0)}(E). \end{aligned} \quad (4.74)$$

Hierbei haben wir die wechselwirkungsfreie Greensche Funktion eingeführt:

$$G_{\mathbf{k}}^{(0)}(E) = \frac{\hbar}{E + \mu - \varepsilon(\mathbf{k}) + i0^+}. \quad (4.75)$$

Gleichung (4.74) stellt ein exaktes Ergebnis im Sinne der Definition (4.69) dar, das für die iterative Bestimmung der effektiven Greenschen Funktion $G_{\mathbf{k}\sigma, \mathbf{k}+\mathbf{q}\sigma'}(E)$ verwendet werden kann. Die einfachste Näherung erhalten wir, wenn wir auf der rechten Seite der Gleichung (4.74) die volle Greensche Funktion durch die wechselwirkungsfreie Greensche Funktion $G_{\mathbf{k}}^{(0)}(E)$ ersetzen:

$$\begin{aligned} G_{\mathbf{k}\sigma, \mathbf{k}+\mathbf{q}\sigma'}^{(1)}(E) &= \delta_{\sigma\sigma'} \delta_{\mathbf{q},0} G_{\mathbf{k}}^{(0)}(E) - \\ &- \frac{J}{N\hbar^2} \sum_i e^{i\mathbf{q} \cdot \mathbf{R}_i} G_{\mathbf{k}}^{(0)}(E) (\mathbf{S}_i \cdot \boldsymbol{\sigma})_{\sigma'\sigma} G_{\mathbf{k}+\mathbf{q}}^{(0)}(E). \end{aligned} \quad (4.76)$$

Der Erwartungswert $\langle c_{\mathbf{k}+\mathbf{q}\sigma'}^+ c_{\mathbf{k}\sigma} \rangle^{(s)}$ ergibt sich nach einfacher Rechnung schließlich zu:

$$\frac{1}{N} \sum_{\mathbf{k}} \langle c_{\mathbf{k}+\mathbf{q}\sigma'}^+ c_{\mathbf{k}\sigma} \rangle^{(s)} \approx \frac{1}{2} \delta_{\mathbf{q},0} \delta_{\sigma\sigma'} \langle n \rangle - \frac{J}{N\hbar} \sum_i e^{i\mathbf{q} \cdot \mathbf{R}_i} (\mathbf{S}_i \cdot \boldsymbol{\sigma})_{\sigma\sigma'} D_{\mathbf{q}}^{(1)}. \quad (4.77)$$

Dabei haben wir bei der Anwendung des Spektraltheorems (3.18) die Definition (3.16) benutzt, wobei wir zur übersichtlichen Darstellung folgende Abkürzungen verwendet haben:

$$\begin{aligned} D_{\mathbf{q}}^{(1)} &= \frac{i}{2\pi\hbar^2} \int_{-\infty}^{+\infty} dE f_{-}(E) \\ &\frac{1}{N} \sum_{\mathbf{k}} \left(A_{\mathbf{k}, \mathbf{k}+\mathbf{q}}^{(1)}(E - \mu + i0^+) - A_{\mathbf{k}, \mathbf{k}+\mathbf{q}}^{(1)}(E - \mu - i0^+) \right) \end{aligned} \quad (4.78)$$

und

$$A_{\mathbf{k},\mathbf{k}+\mathbf{q}}^{(1)}(E) = G_{\mathbf{k}}^{(0)}(E) G_{\mathbf{k}+\mathbf{q}}^{(0)}(E). \quad (4.79)$$

Durch Einsetzen der Gleichung (4.77) in (4.70) und Verwendung der Beziehung

$$\mathbf{S}_i \cdot \boldsymbol{\sigma} = \frac{1}{2} \begin{pmatrix} S_i^z & S_i^- \\ S_i^+ & -S_i^z \end{pmatrix} \quad (4.80)$$

erhalten wir einen effektiven Heisenberg-Operator vom Typ (4.67). Die effektiven Austauschintegrale nehmen, nach einer einfachen Rechnung, die Gestalt

$$J^{(1)}(\mathbf{q}) = -\frac{J^2}{2N\hbar^2} \sum_{\mathbf{k}} \frac{f_-(\varepsilon(\mathbf{k}+\mathbf{q})) - f_-(\varepsilon(\mathbf{k}))}{\varepsilon(\mathbf{k}+\mathbf{q}) - \varepsilon(\mathbf{k})}. \quad (4.81)$$

an. Ein äquivalentes Ergebnis kann auf der Grundlage der zweiten Ordnung der Störungstheorie hergeleitet werden, wobei die Leitungselektronen als unpolarisiert angesehen werden. Die als Rudermann-Kittel-Kasuya-Yosida (RKKY) [19, 20, 21] bekannte Wechselwirkung vermittelt eine Kopplung zwischen den lokalisierten Spins durch Polarisation der Leitungselektronen. Eine Verbesserung der oben vorgestellten Näherung erhält man, wenn für die effektive Greensche Funktion $G_{\mathbf{k}\sigma',\mathbf{k}+\mathbf{q}\sigma}(E)$ die wechselwirkende Greensche Funktion $G_{\mathbf{k}\sigma}(E)$ eingesetzt wird:

$$G_{\mathbf{k}'\sigma'',\mathbf{k}+\mathbf{q}\sigma'}(E) \longrightarrow \delta_{\sigma''\sigma'} \delta_{\mathbf{k}'\mathbf{k}+\mathbf{q}} G_{\mathbf{k}+\mathbf{q}\sigma'}(E), \quad (4.82)$$

$$G_{\mathbf{k}\sigma,\mathbf{k}'\sigma'}(E) \longrightarrow \delta_{\sigma\sigma'} \delta_{\mathbf{k}\mathbf{k}'} G_{\mathbf{k}\sigma}(E). \quad (4.83)$$

Dadurch werden Polarisierungseffekte höherer Ordnung berücksichtigt und wir erhalten die *modifizierte* RKKY-Wechselwirkung [4, 5]. Mit den Ersetzungen (4.82) und (4.83) bekommen wir anstelle der Gleichung (4.78) den allgemeineren Ausdruck

$$D_{\mathbf{q}}^{\sigma\sigma'} = \frac{i}{2\pi\hbar^2} \int_{-\infty}^{+\infty} dE f_-(E) \frac{1}{N} \sum_{\mathbf{k}} \left(A_{\mathbf{k},\mathbf{k}+\mathbf{q}}^{\sigma\sigma'}(E - \mu + i0^+) - A_{\mathbf{k},\mathbf{k}+\mathbf{q}}^{\sigma\sigma'}(E - \mu - i0^+) \right), \quad (4.84)$$

wobei jetzt in $A_{\mathbf{k},\mathbf{k}+\mathbf{q}}^{(1)}(E)$ anstatt des einfachen Produktes der wechselwirkungsfreien Greenschen Funktionen das symmetrisierte Produkt aus $G_{\mathbf{k}}^{(0)}(E)$ und $G_{\mathbf{k}+\mathbf{q}\sigma}(E)$ auftritt. Somit geht $A_{\mathbf{k},\mathbf{k}+\mathbf{q}}^{(1)}(E)$ in die neue Definition

$$A_{\mathbf{k},\mathbf{k}+\mathbf{q}}^{\sigma\sigma'}(E) = \frac{1}{2} \left(G_{\mathbf{k}}^{(0)}(E) G_{\mathbf{k}+\mathbf{q}\sigma}(E) + G_{\mathbf{k}+\mathbf{q}}^{(0)}(E) G_{\mathbf{k}\sigma'}(E) \right) \quad (4.85)$$

über. Mit Gleichung (4.84) können wir den uns interessierenden Erwartungswert wie folgt ausdrücken:

$$\frac{1}{N} \sum_{\mathbf{k}} \langle c_{\mathbf{k}+\mathbf{q}\sigma}^+ c_{\mathbf{k}\sigma'} \rangle^{(s)} = \frac{1}{2} \langle n \rangle \delta_{\mathbf{q},0} \delta_{\sigma\sigma'} - \frac{J}{2N\hbar} \sum_i e^{i\mathbf{q}\cdot\mathbf{R}_i} (\mathbf{S}_i \cdot \boldsymbol{\sigma})_{\sigma\sigma'} D_{\mathbf{q}}^{\sigma\sigma'}. \quad (4.86)$$

Durch Einsetzen der Gleichung (4.86) in (4.70) erhalten wir schließlich einen effektiven Hamilton-Operator der Form

$$H_f = \sum_{ij} \frac{J^2}{2\hbar^2} \frac{1}{N} \sum_{\mathbf{q}} e^{-i\mathbf{q}\cdot(\mathbf{R}_i-\mathbf{R}_j)} \sum_{\sigma\sigma'} D_{\mathbf{q}}^{\sigma'\sigma} (\mathbf{S}_i \cdot \boldsymbol{\sigma})_{\sigma\sigma'} (\mathbf{S}_j \cdot \boldsymbol{\sigma})_{\sigma'\sigma}. \quad (4.87)$$

Um bei der weiteren Auswertung ein isotropes Heisenberg-Modell zu erhalten, benötigen wir eine Symmetrierelation der Funktion $D_{\mathbf{q}}^{\sigma\sigma'}$, die sich aus der Inversionssymmetrie der Bloch-Dispersion $\varepsilon(\mathbf{k})$ (Anhang C) ergibt:

$$D_{\mathbf{q}}^{\uparrow\downarrow} = D_{\mathbf{q}}^{\downarrow\uparrow} = \frac{1}{2} \sum_{\sigma} D_{\mathbf{q}}^{\sigma\sigma}. \quad (4.88)$$

Mit den Beziehungen (4.88) und (4.80) formen wir den effektiven Hamilton-Operator (4.87) in einen isotropen effektiven Heisenberg-Operator um. Die daraus resultierenden effektiven Austauschintegrale sind über die elektronische Selbstenergie von der Temperatur T , der Bandbesetzung n und der Kopplungskonstanten J abhängig. Sie lassen sich in der Ortsdarstellung wie folgt angeben:

$$\hat{J}_{ij} = \frac{1}{N} \sum_{\mathbf{q}} e^{-i\mathbf{q}\cdot(\mathbf{R}_i-\mathbf{R}_j)} \left(-\frac{J^2}{8\hbar^2} \sum_{\sigma} D_{\mathbf{q}}^{\sigma\sigma} \right). \quad (4.89)$$

Zur Lösung des effektiven Heisenberg-Modells (4.67) stellen wir hier die Bewegungsgleichung der im Abschnitt 4.1 (Gleichung 4.27) eingeführten magnonischen Greenschen Funktion auf:

$$D_{ij}^{(a)}(E) = \langle \langle S_i^+; e^{aS_j^z} S_j^- \rangle \rangle_E. \quad (4.90)$$

Sie gestattet die Bestimmung aller Spinkorrelationsfunktionen für beliebige Spinquantenzahl S durch Ableiten nach der reellen Konstanten a , falls wir für die Bewegungsgleichung der Greenschen Funktion (4.90)

$$ED_{ij}^{(a)}(E) = \hbar \langle A^{(a)} \rangle \delta_{ij} + \langle \langle [S_i^+, H_f]_-; e^{aS_j^z} S_j^- \rangle \rangle_E \quad (4.91)$$

eine vernünftige Entkopplungsmethode finden.

Für die Inhomogenität in der Bewegungsgleichung haben wir folgende Abkürzung eingeführt:

$$\langle A^{(a)} \rangle = \langle [S_i^+, e^{aS_i^z} S_i^-]_- \rangle. \quad (4.92)$$

Auf der rechten Seite von (4.91) entstehen höhere Greensche Funktionen, die wir in der Tyablikow-Näherung [62] wie folgt behandeln:

$$\langle\langle S_i^z S_m^+; e^{aS_j^z} S_j^- \rangle\rangle_E \xrightarrow{i \neq m} \langle S_i^z \rangle D_{mj}^{(a)}(E), \quad (4.93)$$

$$\langle\langle S_m^z S_i^+; e^{aS_j^z} S_j^- \rangle\rangle_E \xrightarrow{m \neq i} \langle S_m^z \rangle D_{ij}^{(a)}(E). \quad (4.94)$$

Trotz ihrer Einfachheit hat sich die Tyablikow-Entkopplung als eine sehr gute Näherung für die Behandlung des Heisenberg-Modells im gesamten Temperaturbereich erwiesen, von tiefen bis hin zu hohen Temperaturen. Die genäherte Bewegungsgleichung (4.91) lautet in der Ortsdarstellung:

$$\left(E - 2\hbar \sum_m \langle S_m^z \rangle \hat{J}_{im} \right) D_{ij}^{(a)}(E) = \hbar \langle A^{(a)} \rangle \delta_{ij} - 2\hbar \langle S_i^z \rangle \sum_m \hat{J}_{im} D_{mj}^{(a)}(E). \quad (4.95)$$

Aufgrund der Translationssymmetrie können wir Gleichung (4.95) durch Fourier-Transformation lösen und nach der gesuchten magnonischen Greenschen Funktion umstellen:

$$D_{\mathbf{q}}^{(a)}(E) = \frac{\hbar \langle A^{(a)} \rangle}{E - E(\mathbf{q}) + i0^+}. \quad (4.96)$$

Das Ergebnis der Tyablikow-Näherung ist eine reelle Selbstenergie, die mit der Anregungsenergie $E(\mathbf{q})$ des Systems identisch ist. Die Anregungsenergie

$$E(\mathbf{q}) = 2\hbar \langle S^z \rangle (\hat{J}_0 - \hat{J}(\mathbf{q})), \quad \hat{J}_0 = \hat{J}(\mathbf{q} = 0) \quad (4.97)$$

ist dem Quasiteilchen Magnon zugeordnet, das eine kollektive Anregung des Spinsystems darstellt.

Die magnonische Greensche Funktion ist vollständig bestimmt, wenn es gelingt, die Inhomogenität (4.92) in Abhängigkeit von der reellen Konstanten a auszuwerten. Eine solche Auswertung führt, wie in [54] gezeigt wurde, zu einer Differentialgleichung zweiter Ordnung in dem Parameter a , die für den folgenden Erwartungswert hergeleitet werden kann [54, 43]:

$$\Omega(a) = \langle e^{aS^z} \rangle. \quad (4.98)$$

Die Lösung der Differentialgleichung dient anschließend als erzeugende Funktion zur Bestimmung des Erwartungswertes der Magnetisierung $\langle S^z \rangle$ durch Ableiten nach dem reellen Parameter a an der Stelle $a = 0$:

$$\langle S^z \rangle = \left. \frac{d\Omega(a)}{da} \right|_{a=0}. \quad (4.99)$$

Der Erwartungswert $\langle S^z \rangle$ ergibt sich nach der obigen Vorschrift (4.99) zu:

$$\langle S^z \rangle = \hbar \frac{(1 + S + \varphi) \varphi^{2S+1} + (S - \varphi)(1 + \varphi)^{2S+1}}{(1 + \varphi)^{2S+1} - \varphi^{2S+1}}. \quad (4.100)$$

Hierbei bezeichnet φ die mittlere Magnonenbesetzungszahl:

$$\varphi(S) = \frac{1}{N} \sum_{\mathbf{q}} \frac{1}{e^{\beta E(\mathbf{q})} - 1}, \quad (4.101)$$

die neben der Magnetisierung $\langle S^z \rangle$ auch alle anderen Spinkorrelationsfunktionen bestimmt, wie zum Beispiel

$$\langle S^- S^+ \rangle = 2\hbar \langle S^z \rangle \varphi(S), \quad (4.102)$$

$$\langle (S^z)^2 \rangle = \hbar^2 S(S+1) - \hbar \langle S^z \rangle (1 + 2\varphi(S)) \quad (4.103)$$

und

$$\begin{aligned} \langle (S^z)^3 \rangle &= \hbar^3 S(S+1) \varphi(S) + \hbar^2 \langle S^z \rangle (S(S+1) + \varphi(S)) \\ &\quad - \hbar \langle (S^z)^2 \rangle (1 + 3\varphi(S)). \end{aligned} \quad (4.104)$$

Offensichtlich können wir mit dem oben vorgestellten Verfahren alle reinen lokalen Spinkorrelationsfunktionen bestimmen, die in der elektronischen Selbstenergie (4.3.1) auftreten. Es läßt sich damit ein geschlossenes Gleichungssystem zur Berechnung sowohl der elektronischen Selbstenergie als auch der temperaturabhängigen Magnetisierung gewinnen.

Eine wichtige physikalische Größe, die zur Charakterisierung ferromagnetischer Materialien herangezogen wird, ist die Curie-Temperatur T_C , deren Bestimmung wir uns jetzt widmen werden. Dazu entwickeln wir Gleichung (4.100) nach Potenzen von $1/\varphi$. Für unseren Zweck ist es ausreichend, nur den Term in erster Ordnung zu berücksichtigen:

$$\langle S^z \rangle = \hbar \frac{S(S+1)}{3\varphi(S)} + \mathcal{O}(1/\varphi^2). \quad (4.105)$$

Nun ist (4.101) für $\langle S^z \rangle \rightarrow 0$ durch folgenden Ausdruck in (4.105) zu ersetzen:

$$\varphi(S) \approx \frac{1}{N} \sum_{\mathbf{k}} \frac{1}{2\hbar\beta \langle S^z \rangle (\hat{J}_0 - \hat{J}(\mathbf{q}))}. \quad (4.106)$$

Damit können wir in (4.105) die Magnetisierung $\langle S^z \rangle$ eliminieren und nach β umstellen. Die Curie-Temperatur T_C ergibt sich schließlich zu:

$$k_B T_C = \frac{2}{3} \hbar^2 S(S+1) \left(\frac{1}{N} \sum_{\mathbf{q}} \frac{1}{(\hat{J}_0 - \hat{J}(\mathbf{q}))_{T_C}} \right)^{-1}. \quad (4.107)$$

In einem iterativen Verfahren können wir die Curie-Temperatur selbstkonsistent mit Hilfe der Gleichung (4.107) berechnen.

4.4 Numerische Ergebnisse

In diesem Kapitel wollen wir einige Ergebnisse der numerischen Auswertung des Ein-Band-Kondo-Gitter-Modells diskutieren. Dafür haben wir das einfache kubische Gitter mit der Bloch-Energie (2.10) verwendet. Anhand der so erhaltenen numerischen Resultate diskutieren wir sowohl die magnetischen als auch die elektronischen Eigenschaften des Ein-Band-Kondo-Gitter-Modells. Anschließend erörtern wir die temperaturabhängige elektronische Struktur mit Hilfe der Quasiteilchen-Zustandsdichte und die magnetischen Eigenschaften des lokalisierten Spinsystems anhand einiger selbstkonsistent berechneter Spinkorrelationsfunktionen, wie z.B. der Magnetisierung $\langle S^z \rangle$.

4.4.1 Phasendiagramm

Mit der im Unterabschnitt 4.3.1 vorgestellten approximativen Theorie für das elektronische System wollen wir die innere Energie des Ein-Band-Kondo-Gitter-Modells näher untersuchen. Wir vergleichen die innere Energie des ferromagnetischen Zustandes mit der des paramagnetischen Zustands bei $T = 0$ K. Daher setzen wir $\langle S^z \rangle = \hbar S$ für die ferromagnetische und $\langle S^z \rangle = 0$ für die paramagnetische Phase. Da wir die numerischen Berechnungen für zwei wohldefinierte Zustände durchführen, entfällt zunächst die Untersuchung des lokalisierten Spinsystems. In beiden Fällen werten wir Gleichung (4.26) aus. Abbildung 4.5 zeigt den Vergleich der inneren Energien des ferromagnetischen und paramagnetischen Zustands für das Ein-Band-Kondo-Gitter-Modell. Bei der Diskussion des Phasendiagramms

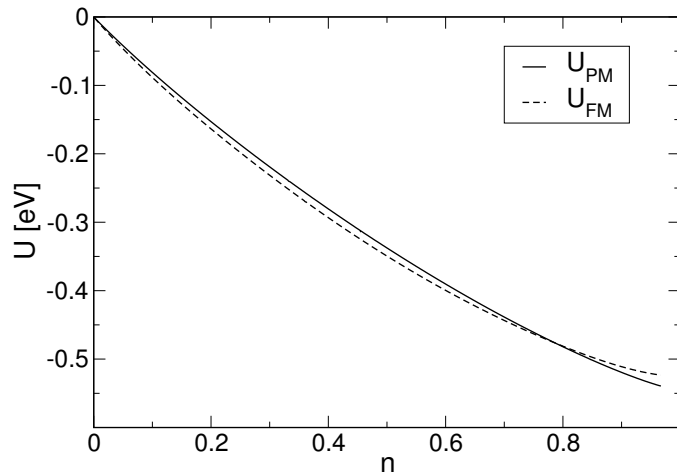


Abbildung 4.5: Innere Energie U bei $T = 0$ K in Abhängigkeit von der Elektronendichte n für $J = 0.3$ eV, Spin $S = \frac{7}{2}$ und Bandbreite $W = 1$ eV.

werden wir uns auf Elektronendichten n unterhalb der Halbfüllung ($n = 1$) be-

schränken, da Teilchen-Loch-Symmetrie gilt.

Für Elektronendichten n , die weit oberhalb $n = 0.6$ liegen, besitzt der ferromagnetische Zustand eine höhere Energie als der paramagnetische Zustand. Daher erweist sich der ferromagnetische Zustand in diesem Bereich als instabil gegenüber dem paramagnetischen. Nun wollen wir die Stabilitätsgrenze genauer bestimmen. Dazu tragen wir die Schnittpunkte beider Energien (Abbildung 4.5) in Abhängigkeit der Elektronendichte n und der Kopplungskonstante J auf. Wir erhalten auf diese Weise das in Abbildung 4.6 dargestellte Phasendiagramm. Danach wird Ferromagnetismus für Elektronendichten im Bereich $n < 0.85$ und für mittlere bis starke Kopplungen J bevorzugt. Die Betrachtungen dieses Abschnittes sind auf translationsinvariante Systeme beschränkt. Eine Ausweitung auf verschiedene antiferromagnetische Phasen wurde in [63] vorgestellt.

Monte-Carlo Rechnungen [64, 65] haben ergeben, daß in diesem Bereich Phasentrennung zwischen einer antiferromagnetischen und der ferromagnetischen Phase

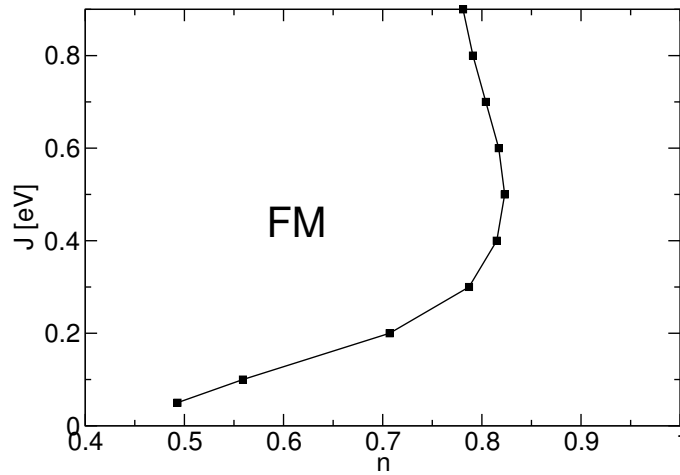


Abbildung 4.6: Phasendiagramm des Ein-Band-Kondo-Gitter-Modells für $S = \frac{7}{2}$ und $W = 1$ eV. FM: ferromagnetisch stabiler Bereich.

auftritt. Der so untersuchte ferromagnetische Bereich im Phasendiagramm ist qualitativ in guter Übereinstimmung mit unserem Phasendiagramm in Abbildung 4.6. Untersuchung des Phasendiagramms des Kondo-Gitter-Modells mittels *dynamischer Mean-Field-Theorie* (DMFT) [66] mit klassischen Spins ergaben ebenfalls qualitativ gleiche Ergebnisse. In [67] wurde durch Untersuchung der Spinwellensteifigkeit mit Hilfe der Spinwellentheorie ein qualitativ ähnliches Phasendiagramm aufgestellt.

Die Differenz ΔU der inneren Energie der zwei beteiligten Phasen kann dazu verwendet werden, die Größenordnung der Curie-Temperatur T_C abzuschätzen. Die Abschätzung der Curie-Temperatur erfolgt durch Vergleich der Energiedifferenz

ΔU mit der thermischen Energie $k_B T$ [68]:

$$k_B T_C \approx U_{PM} - U_{FM}. \quad (4.108)$$

Dazu haben wir die Energiedifferenz ΔU als Funktion der Elektronendichte n in Abbildung 4.7 aufgetragen. Für die Kopplung $J = 0.3$ eV und Elektronendichte $n = 0.4$ ergibt sich für die Curie-Temperatur $T_C = 150$ K. Es sei hier noch einmal darauf hingewiesen, daß die oben diskutierte Abschätzung keinesfalls eine vollständige Theorie zur Bestimmung der Temperaturabhängigkeit und somit der Curie-Temperatur ersetzen kann.

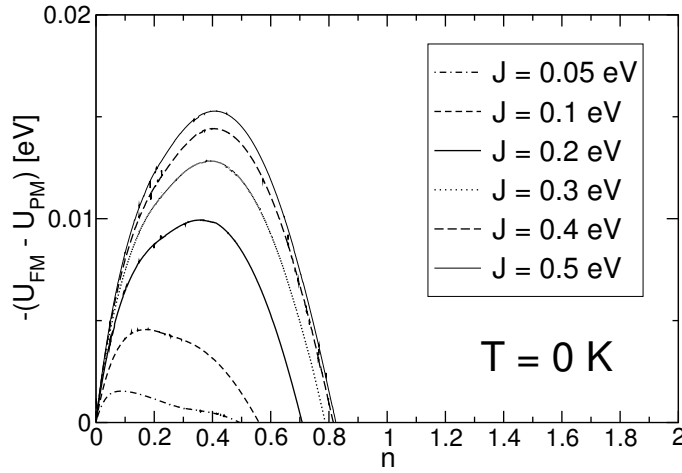


Abbildung 4.7: Energiedifferenz in Abhängigkeit von der Elektronendichte n für verschiedene Kopplungskonstanten J . Weitere Parameter: $S = \frac{7}{2}$, $W = 1$ eV, einfach kubisches Gitter.

Trotz der starken Abhängigkeit der so abgeschätzten Curie-Temperatur von den Modellparametern J und n (Abbildung 4.7) wird sie vorwiegend vom Verhalten der kinetischen Energie bestimmt. In Abbildung 4.8 sind die kinetische Energie K und die potentielle Energie V als Funktion der Elektronendichte dargestellt. Es ist leicht zu erkennen, daß die starke Abhängigkeit der Energiedifferenz ΔU von der Elektronendichte n in Abbildung 4.7 entscheidend durch die kinetische Energie beeinflusst wird. Die potentielle Energie V ist in diesem Fall lediglich eine lineare Funktion der Elektronendichte n . Für schwache Kopplungen dagegen wird der ferromagnetische Zustand durch die potentielle Energie V_{FM} stabilisiert. Hier kommt es zu einem konkurrierenden Effekt: Die potentielle Energie stabilisiert den ferromagnetischen Zustand während die kinetische Energie den paramagnetischen Zustand begünstigt. Im ersten Fall (Abbildung 4.8) tragen sowohl potentielle als auch kinetische Energie zur Stabilität des ferromagnetischen Zustandes bei.

Abbildung 4.10 zeigt die Energiedifferenz $\Delta U = U_{PM} - U_{FM}$ in Abhängigkeit von

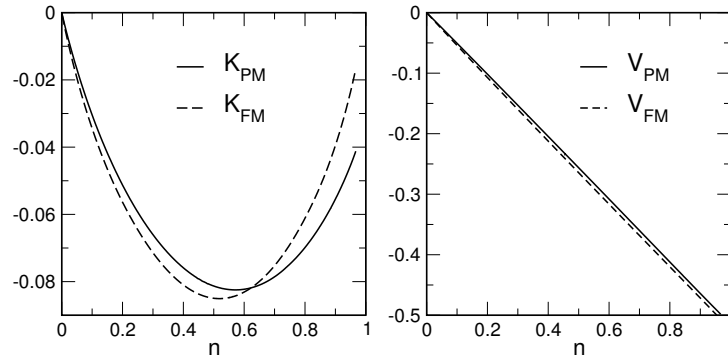


Abbildung 4.8: Links ist die kinetische Energie und rechts die potentielle Energie in Abhängigkeit von der Elektronendichte n für den paramagnetischen und ferromagnetischen Zustand dargestellt. Parameter: $J = 0.3$ eV, $W = 1$ eV, $S = \frac{7}{2}$.

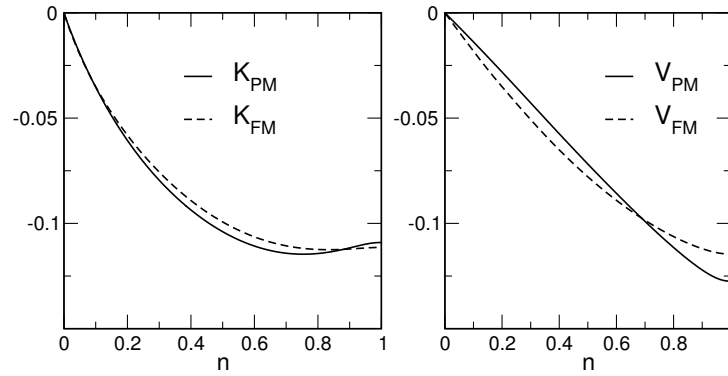


Abbildung 4.9: Wie in Abbildung 4.8. Parameter: $J = 0.1$ eV, $W = 1$ eV und $S = \frac{7}{2}$.

der Austauschkonstanten J für zwei verschiedene Elektronendichten $n = 0.1$ und $n = 0.6$. Im Bereich schwacher Kopplung und Elektronendichte $n = 0.6$ führt der Gewinn an kinetischer Energie in der paramagnetischen Phase zu einem kritischen Wert der Austauschkonstanten, ab dem Ferromagnetismus im Grundzustand des Kondo-Gitter-Modells möglich ist. Dagegen ist der Gewinn an kinetischer Energie für $n = 0.1$ in der paramagnetischen Phase nicht ausreichend, um diesen Zustand zu stabilisieren. Dieser Beitrag wird gänzlich von der potentiellen Energie kompensiert, so daß in diesem Fall der Ferromagnetismus bereits bei sehr kleinen Werten der Austauschkonstante einsetzt.

Für $n = 0.6$ steigt ΔK mit zunehmender Kopplung stark an. Dennoch kann dieser Effekt ausschließlich auf den Zuwachs der kinetischen Energie in der paramagnetischen Phase zurückgeführt werden, da die kinetische Energie K_{FM} in der ferromagnetischen Phase schwach von der Austauschkonstanten abhängt. Um ein besseres Verständnis für die Ursache des kritischen Wertes der Austauschkonstan-

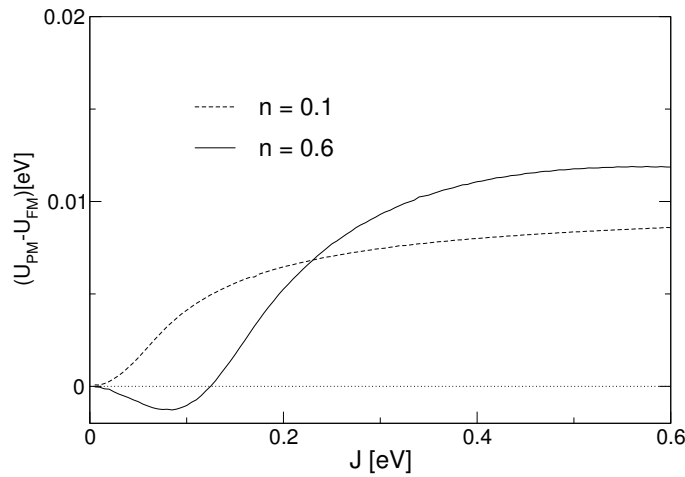


Abbildung 4.10: Energiedifferenz als Funktion der Austauschkonstanten J für $n = 0.1$ und $n = 0.6$. Weitere Parameter: $S = \frac{7}{2}$, $W = 1$ eV, einfach kubisches Gitter.

ten J_c zu bekommen, haben wir in Abbildung 4.11 die Differenzen der kinetischen und potentiellen Energie in Abhängigkeit von der Koppelkonstanten dargestellt. Der kritische Wert der Austauschkonstanten für $n = 0.6$ wird im wesentlichen

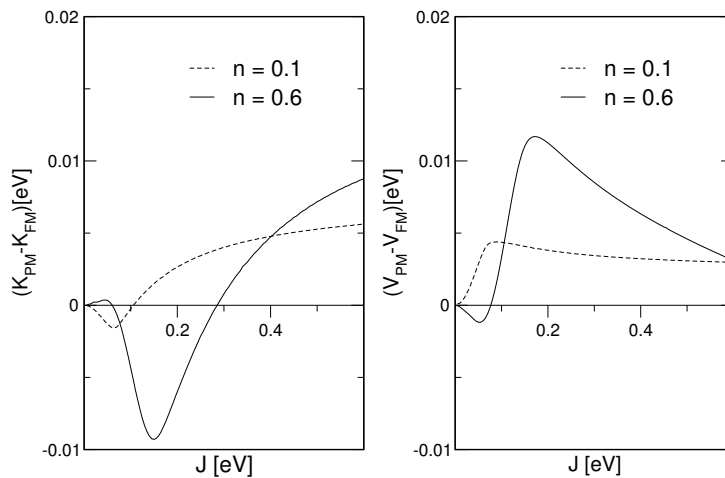


Abbildung 4.11: Differenz der kinetischen bzw. potentiellen Energie als Funktion der Austauschkonstanten J für zwei Elektronendichten $n = 0.1$ und $n = 0.6$.

durch die starke Zunahme der kinetischen Energie in der ferromagnetischen Phase gegenüber der paramagnetischen Phase verursacht. Die Zunahme an potentieller Energie, die diesem Effekt entgegensteuert, ist für $n = 0.6$ nicht ausreichend, um den Zuwachs an kinetischen Energie zu kompensieren. Damit führt das schnelle Ansteigen der kinetischen Energie für relative kleine Werte der Austauschkon-

stanten in der ferromagnetischen Phase zu einer Instabilität des ferromagnetischen Zustandes.

Für den Bereich starker Kopplung führt die kinetische Energie zur Stabilisierung des ferromagnetischen Zustandes. Dies ist in Abbildung 4.11 zu erkennen.

4.4.2 Elektronisches System

In diesem Unterabschnitt wollen wir die temperaturabhängige elektronische Struktur anhand einiger typischer Ergebnisse für das Ein-Band-Kondo-Gitter-Modell vorstellen und diskutieren. Abbildung 4.12 zeigt die Quasiteilchen-Zustandsdichte im Grenzfall des *ferromagnetisch gesättigten Halbleiters* für die Spinquantenzahl $S = \frac{7}{2}$. Diesen Grenzfall haben wir für $S = \frac{1}{2}$ im Unterabschnitt 4.2.1 behandelt. Wie dort bereits erwähnt, ist es für ein \uparrow -Elektron nicht möglich,

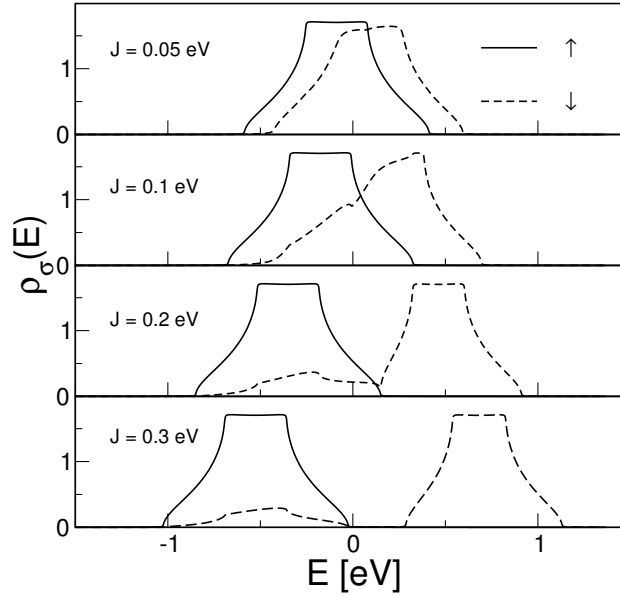


Abbildung 4.12: Energieabhängige Quasiteilchen-Zustandsdichte für verschiedene Kopplungsstärken J . Parameter: Temperatur $T = 0$, Elektronendichte $n = 0$, Bandbreite $W = 1$ eV, Spin $S = \frac{7}{2}$.

seinen Spin mit dem vollständig ausgerichteten lokalisierten Spinsystem auszutauschen. Bei höheren Temperaturen kann ein \uparrow -Elektron durch Absorption angeregter Magnonen seinen Spin mit dem lokalisierten Spinsystem austauschen. Die Absorption von Magnonen durch die \uparrow -Elektronen ist in der \uparrow -Quasiteilchen-Zustandsdichte in der Abbildung 4.13 [4, 2, 3] zu erkennen. Besonders ausgeprägt ist dieser Effekt für $T = 135$ K. Dabei bildet sich in der \uparrow -Quasiteilchen-Zustandsdichte ein Streuanteil, der in etwa das gleiche Spektralgewicht wie im

\downarrow -Fall besitzt. Die Umverteilung von Spektralgewicht mit der Temperatur führen wir auf die Interbandaustauschkopplung zwischen dem elektronischen System und dem lokalisierten Spinsystem zurück.

Die starke Temperaturabhängigkeit der Spinkorrelationsfunktionen bewirkt drastische Änderungen in der Quasiteilchen-Zustandsdichte des elektronischen Systems. Die Entstehung zweier Quasiteilchen-Bänder kann auf die bereits in 4.2.1

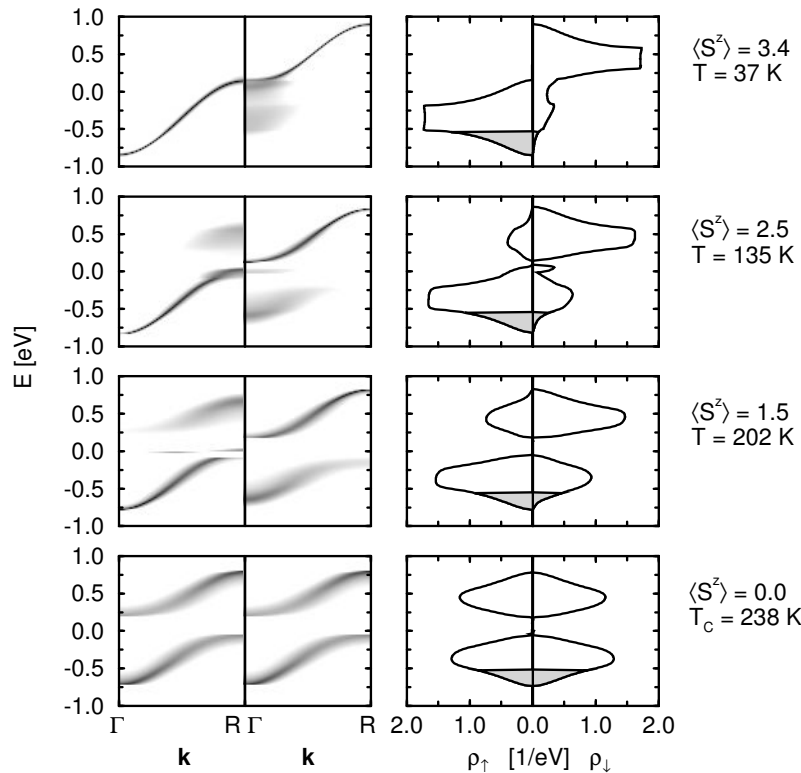


Abbildung 4.13: Links: Quasiteilchen-Bandstruktur entlang Γ -R für verschiedene Temperaturen. Rechts: Quasiteilchen-Zustandsdichte als Funktion der Energie E . Parameter: $J = 0.2$ eV, $n = 0.2$, $W = 1$ eV, $S = \frac{7}{2}$, einfach kubisches Gitter.

diskutierten elementaren Prozesse, nämlich die Bildung eines gebundenen Zustandes in Form des *magnetischen Polarons* und auf Magnonenemission zurückgeführt werden. Weiterhin kommt es bei höheren Temperaturen zu vermehrter Magnonenabsorption. Dies ist in Abbildung 4.13 durch die Zunahme des spektralen Gewichtes im oberen \uparrow -Quasiteilchen-Band zu erkennen.

Mit steigender Temperatur wächst die Anzahl angeregter Magnonen im System. Je mehr Magnonen im System vorhanden sind, desto stärker wird dadurch das elektronische System depolarisiert. Die Zunahme der Magnonenzahl hat letztlich

zur Folge, daß bei der Curie-Temperatur beide Teilsysteme unpolarisiert sind. In diesem Fall verschwinden beide Ordnungsparameter $\langle S_i^z \rangle$ und $\langle \sigma_i^z \rangle$ bei der gleichen Übergangstemperatur.

Wir wollen nun einige gemischte Korrelationsfunktionen diskutieren, die in der Abbildung 4.14 dargestellt sind. Zum Vergleich ist auch die normierte Magnetisierung des lokalisierten Spinsystems aufgetragen. Zunächst vergleichen wir das qualitative Verhalten der Polarisation des elektronischen System

$$m = \frac{\langle n_{\uparrow} \rangle - \langle n_{\downarrow} \rangle}{n} \quad (4.109)$$

mit der normierten Magnetisierung des lokalisierten Spinsystems. Für eine Elek-

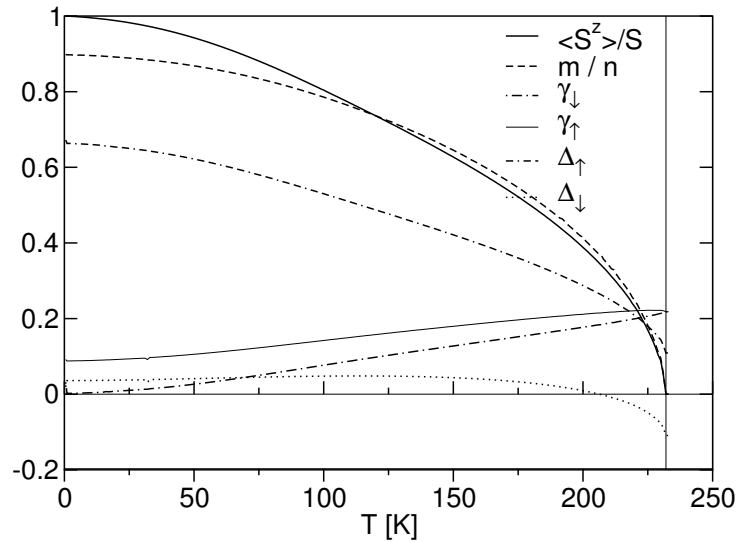


Abbildung 4.14: Normierte Magnetisierung, Polarisation m , *Spinflip*-Korrelationsfunktion (Spinaustauschrate) und *Ising*-Korrelationsfunktion als Funktion der Temperatur. Parameter: $J = 0.2$ eV, $n = 0.2$, $W = 1$ eV, $S = \frac{7}{2}$, einfach kubisches Gitter.

tronendichte von $n = 0.2$ und eine Kopplung von $J = 0.2$ eV erreicht das elektronische System bei $T = 0$ K keine vollständige Polarisation. Eine Depolarisation des elektronischen Systems kann auf die Spinaustauschprozesse zurückgeführt werden. Diese werden durch die gemischte Korrelationsfunktion (4.66) beschrieben. Die Nichtberücksichtigung des Spinaustausches und der Magnonen für die in Abbildung 4.14 angegebenen Parameter würde zu einer vollständigen Polarisation im elektronischen System führen. In Näherungen, die die lokalisierten Spins als klassisch behandeln [69, 70, 71] oder Spinaustauschprozesse gänzlich außer Acht lassen, ist eine vollständige Polarisation zu erwarten.

4.4.3 Das lokalisierte Spinsystem

Das lokalisierte Spinsystem trägt maßgeblich zur Temperaturabhängigkeit des gesamten Systems bei. Eine spontane ferromagnetische Ordnung ist jedoch ohne das *a priori* unmagnetische elektronische System nicht möglich. Denn das elektronische System vermittelt eine effektive Kopplung, die RKKY-Wechselwirkung, zwischen den lokalisierten Spins. Dadurch kann zumindest für bestimmte Parameterkonstellationen eine ferromagnetische Ordnung begünstigt werden.

Eine spontane ferromagnetische Ordnung liegt vor, wenn ein von Null verschiedener Wert des Ordnungsparameters $\langle S_i^z \rangle$ unterhalb einer kritischen Temperatur, der Curie-Temperatur, zu finden ist. Wir haben die Magnetisierung $\langle S_i^z \rangle$ und alle anderen Korrelationsfunktionen in einem selbstkonsistenten Zyklus einschließlich der Selbstenergie des elektronischen Systems bestimmt. In der Abbildung 4.15 [4, 5] sind die relevanten Korrelationsfunktionen des lokalisierten Spinsystems dargestellt. Die Magnetisierung $\langle S_i^z \rangle$ verschwindet bei einer Curie-Temperatur von $T_C = 238$ K. Die Curie-Temperatur T_C ist eine der wichtigsten physikalischen

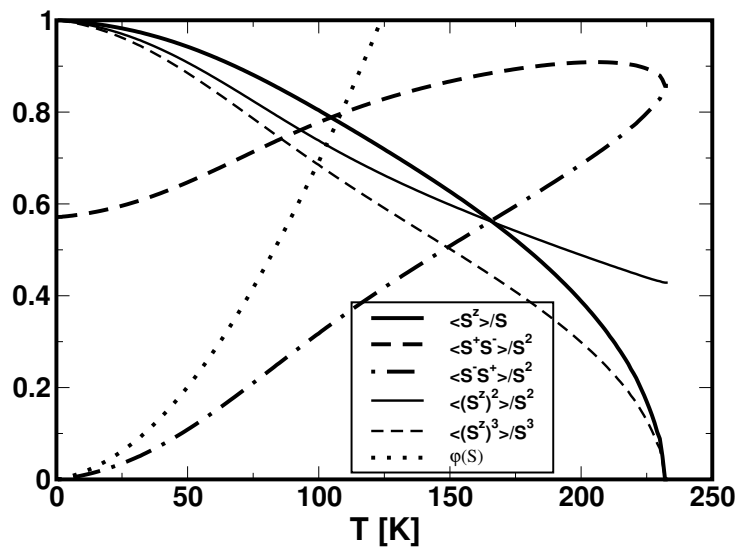


Abbildung 4.15: Lokale Spinkorrelationsfunktionen des lokalisierten Spinsystem in Abhängigkeit von der Temperatur. Parameter: $J = 0.2$ eV, $n = 0.2$, $W = 1$ eV, $S = \frac{7}{2}$, einfach kubisches Gitter [4, 5].

Größen, die zur Charakterisierung ferromagnetischer Materialien herangezogen wird. Sie hängt im Kondo-Gitter-Modell – außer von der Kopplungskonstanten J – empfindlich von der Elektronendichte n ab. Abbildung 4.16 stellt die Curie-Temperatur als Funktion der Elektronendichte für verschiedene Kopplungsstärken J dar. Für das halbgefüllte Leitungsband ($n = 1$) bekommen wir im Rahmen unserer Rechnung keine ferromagnetische Ordnung. Die Untersuchungen des Kondo-

Gitter-Modells in [72, 73, 74] bestätigen die Instabilität des ferromagnetischen Grundzustandes bei der Elektronendichte $n = 1$. Auch in den Vorbetrachtungen

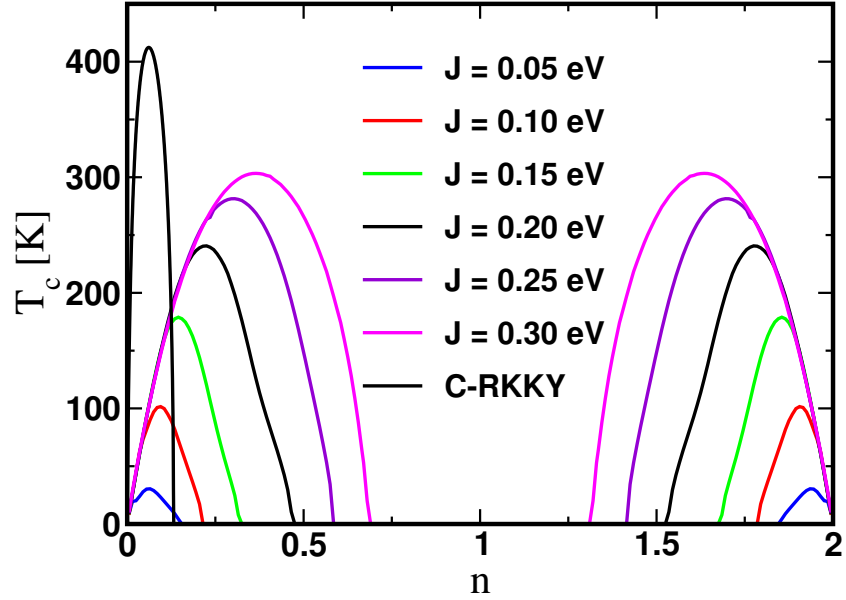


Abbildung 4.16: Curie-Temperatur T_C in Abhängigkeit von der Elektronendichte n für verschiedene Austauschkopplungen J . Parameter: $W = 1$ eV, $S = \frac{7}{2}$, einfach kubisches Gitter [4, 5, 2, 3].

im Unterabschnitt 4.4.1 (Abbildung 4.6) haben wir festgestellt, daß der Grundzustand in der Umgebung von $n = 1$ instabil war. Offenbar spiegelt sich das qualitative Verhalten des Grundzustandes in der Curie-Temperatur wider.

Eine quantitative Übereinstimmung mit den Ergebnissen aus dem Unterabschnitt 4.4.1 ist hier nicht zu erwarten, da in der selbstkonsistenten Berechnung der Curie-Temperatur das lokalisierte Spinsystem einbezogen wurde. Damit geht die Temperaturabhängigkeit der Spinkorrelationsfunktionen in die Bestimmung der Curie-Temperatur ein. Diese kann, wie wir in Abbildung 4.15 gezeigt haben, nicht vernachlässigt werden.

Bemerkenswert ist jedoch die Tatsache, daß sich die Abhängigkeit von der Elektronendichte n in Abbildung 4.16 mit der in Abbildung 4.6 sehr ähnelt. Auch in [75, 73, 74] sind die mit Hilfe der DMFT erzielten Ergebnisse mit unseren vergleichbar, wobei zur Anwendung der DMFT die lokalisierten Spins als klassische Vektoren betrachtet wurden.

Die Untersuchung eines vereinfachten Kondo-Gitter-Modells mittels DMFT [76] führt zu einem $T_C - n$ -Diagramm, das für sämtliche Elektronendichten im Bereich $0 < n < 1$ eine von Null verschiedene Curie-Temperatur zeigt. Die Vereinfachung des Kondo-Gitter-Modells (2.13) besteht in der Vernachlässigung des *Spinflip*-

Terms.

Die Curie-Temperatur nimmt für eine feste Elektronendichte n mit der Kopplung J zu. Sie erreicht jedoch im Bereich starker Kopplung einen Sättigungswert, der

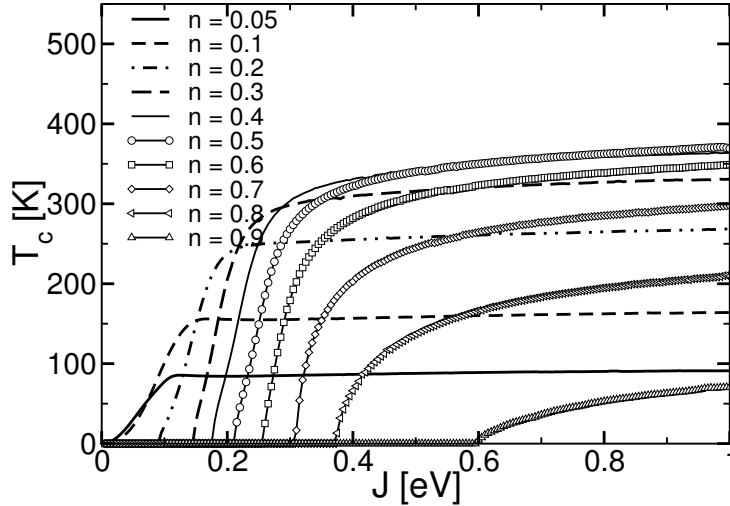


Abbildung 4.17: Curie-Temperatur T_C in Abhängigkeit von der Kopplungskonstanten J für verschiedene Elektronendichten n . Parameter: Wie in Abbildung 4.16 [6].

von der Elektronendichte abhängig ist. Dieses Verhalten ist in der Abbildung 4.17 zu sehen. Darin ist die Curie-Temperatur als Funktion der Kopplungsstärke J für verschiedene Elektronendichten n dargestellt. Oberhalb $n \approx 0.5$ sehen wir eine Abnahme des Sättigungswertes der Curie-Temperatur.

Im Bereich schwacher Kopplung und für kleine Elektronendichten haben wir es mit einer quadratischen Abhängigkeit der Curie-Temperatur von J zu tun, der *konventionellen* RKKY (Gleichung 4.81). Abweichungen vom *konventionellen* RKKY-Verhalten treten für höhere Elektronendichten auf. Bei diesem muß nun ein kritischer Wert von J überschritten werden, um Ferromagnetismus zu beobachten. In einigen Bereichen des $T_C - n$ - und $T_C - J$ -Diagramms treten negative Werte der Curie-Temperatur auf, die auf eine Instabilität des ferromagnetischen Zustandes hinweisen.

Wir können anhand der Abhängigkeit der Curie-Temperatur von der Austauschkonstanten J zwischen dem *konventionellen* RKKY-Verhalten und dem *Double-Exchange*-Verhalten unterscheiden. Im *Double-Exchange*-Regime, der den Limes starker Korrelationen ($JS \gg W$) des Kondo-Gitter-Modells darstellt, ist die Curie-Temperatur eine lineare Funktion der Bandbreite W ($T_C \sim W$). In Abbildung 4.18 [2, 3, 77] ist die Curie-Temperatur als Funktion der Austauschkonstanten J für verschiedene Bandbreiten W dargestellt. Im Bereich schwacher Kopplung nimmt die Curie-Temperatur mit zunehmender Bandbreite W ab. Im Fall der Sättigung

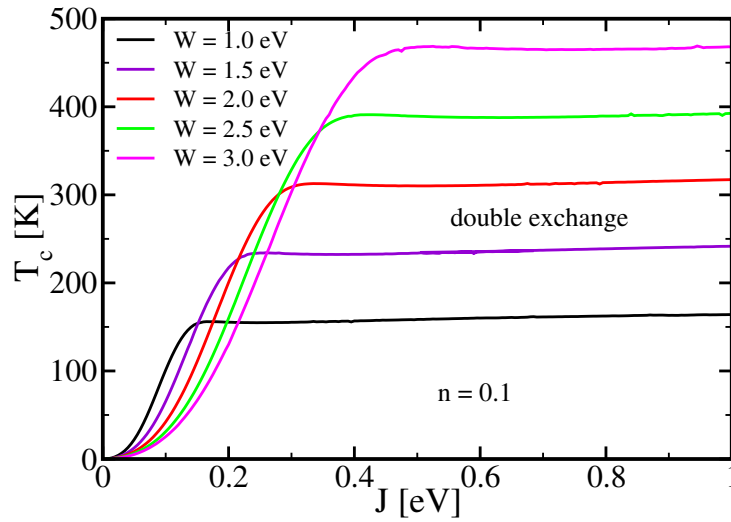


Abbildung 4.18: Für eine Elektronendichte $n = 0.1$ ist die Curie-Temperatur als Funktion der Austauschkopplung J für verschiedene Bandbreiten W dargestellt. Parameter: $S = \frac{7}{2}$, einfach kubisches Gitter.

dagegen können wir eine Zunahme der Curie-Temperatur mit zunehmender Bandbreite W beobachten. Es stellt sich heraus, daß die Curie-Temperatur eine lineare Funktion der Bandbreite W ist. Dieser Bereich kann dem dem sogenannten *Double-Exchange*-Regime des Kondo-Gitter-Modells [38, 23, 39] zugeordnet werden. Abbildung 4.19 [2, 3, 77] zeigt die Curie-Temperatur als Funktion der

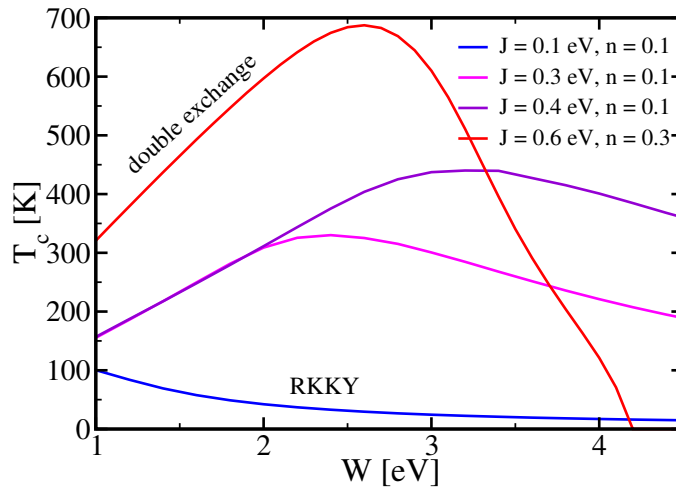


Abbildung 4.19: Curie-Temperatur in Abhängigkeit von der Bandbreite für verschiedene Austauschkopplung J und Elektronendichten n . Parameter: $S = \frac{7}{2}$, einfach kubisches Gitter.

Bandbreite W für verschiedene Kopplungen J und Elektronendichten n . Darin sehen wir deutlich ein lineares Anwachsen der Curie-Temperatur mit der Bandbreite W gefolgt von einem Übergangsbereich. Diesem schließt sich der *konventionelle* RKKY-Bereich an, in dem die Curie-Temperatur mit der Bandbreite abnimmt. Analytische Untersuchungen der DMFT-Gleichungen in [74] bestätigen dieses Verhalten der Curie-Temperatur. Für schwache Kopplung ist in der DMFT eine Abnahme der Curie-Temperatur mit der Bandbreite zu verzeichnen:

$$T_C \sim \frac{J^2}{W}. \quad (4.110)$$

Die DMFT liefert für starke Kopplungen sowohl bezüglich der Bandbreite W als auch der Elektronendichte n ein lineares Verhalten der Curie-Temperatur [69, 78, 79]:

$$T_C \approx 0.53 n W. \quad (4.111)$$

Im Rahmen der *modifizierten* RKKY beobachten wir ein gleichmäßiges Aufweichen der Magnonendispersion mit zunehmender Temperatur. Der qualitative Temperaturverlauf wird hier durch die Magnetisierung $\langle S_i^z \rangle$ bestimmt, da die effektiven Magnonenenergien (4.97) in der RPA-Näherung proportional zur Magnetisierung des lokalisierten Spinsystems sind. Deshalb nehmen die Magnonenenergien gleichmäßig (Abbildung 4.20) mit der Temperatur ab und verschwinden bei der Curie-Temperatur. Dagegen ist das Aufweichen der Magnonendispersion

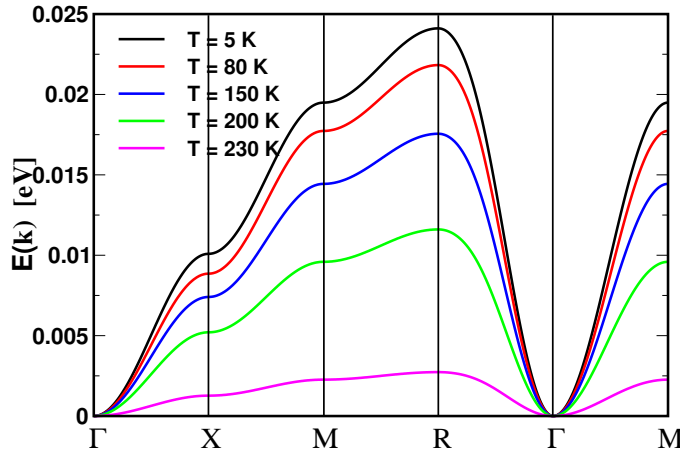


Abbildung 4.20: Magnonendispersion in Abhängigkeit der Temperatur T für $J = 0.2$ eV und $n = 0.2$ [5].

am Rande der ersten Brillouin-Zone ein Verhalten, das in der Spindynamik von $\text{La}_{0.67}\text{Ca}_{0.33}\text{MnO}_3$ [80] und $\text{Pr}_{0.63}\text{Sr}_{0.37}\text{MnO}_3$ [8] experimentell gemessen wurde.

Bei diesen Beobachtungen bleibt jedoch während des nichtgleichmäßigen Aufweichens der Magnonendispersion die Spinwellensteifigkeit $D(E(\mathbf{q}) = D\mathbf{q}^2)$ konstant. Für ein System, das durch das Heisenberg-Modell beschrieben wird, wäre das Verhältnis D/T_C eine universelle Konstante.

Manganate zeigen jedoch beachtliche Abweichungen von diesem Verhalten [80, 8, 81]. Dabei nimmt D/T_C mit sinkender Curie-Temperatur ab. Um dieses Verhal-

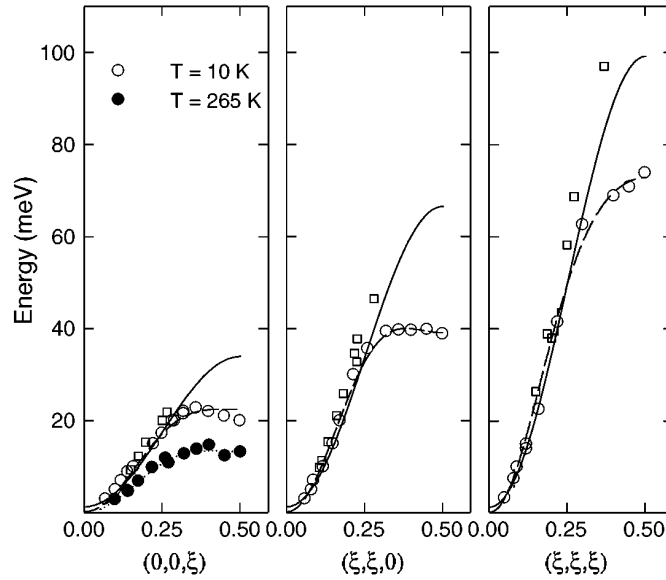


Abbildung 4.21: Magnonenenergien in verschiedenen Richtungen $(0,0,\xi)$, $(\xi,\xi,0)$ und (ξ,ξ,ξ) . \circ und \bullet experimentelle Daten der Substanz $\text{Pr}_{0.63}\text{Sr}_{0.37}\text{MnO}_3$ und \square für $\text{La}_{0.7}\text{Pb}_{0.3}\text{MnO}_3$ ($T = 10$ K). Heisenberg-Modell mit Austausch zu nächsten Nachbarn (durchgezogene Linie) und Austausch bis zu viertnächsten Nachbarn (gestrichelte Linie) [7, 8].

ten zu erklären, wurde in [81] eine auf dem Orbital-Modell der Leitungselektronen basierende Theorie entwickelt. Damit konnte das Aufweichen der Magnonendispersion am Rande der Brillouin-Zone erklärt werden.

In Abbildung 4.21 sind die experimentell gemessenen Magnonendispersionen von $\text{Pr}_{0.63}\text{Sr}_{0.37}\text{MnO}_3$ und $\text{La}_{0.7}\text{Pb}_{0.3}\text{MnO}_3$ dargestellt. Es ist zu erkennen, daß für beide Substanzen die Magnonendispersionen am Rande der Brillouin-Zone ($\xi = 0.5$) unterschiedlich sind. Während die Spinsteifigkeit D für beide Substanzen praktisch den gleichen Wert besitzt, ist das für die Magnonenenergien am Rande der Brillouin-Zone nicht der Fall. Sie unterscheiden sich dort um 15-30 meV.

Wir haben in [67] die Magnonendispersion des Ein-Band-Kondo-Gitter-Modells

untersucht. Dabei stellte sich heraus, daß das Aufweichen der Magnonendispersion das Resultat der Elektron-Magnon-Wechselwirkung ist. In der *modifizierten*

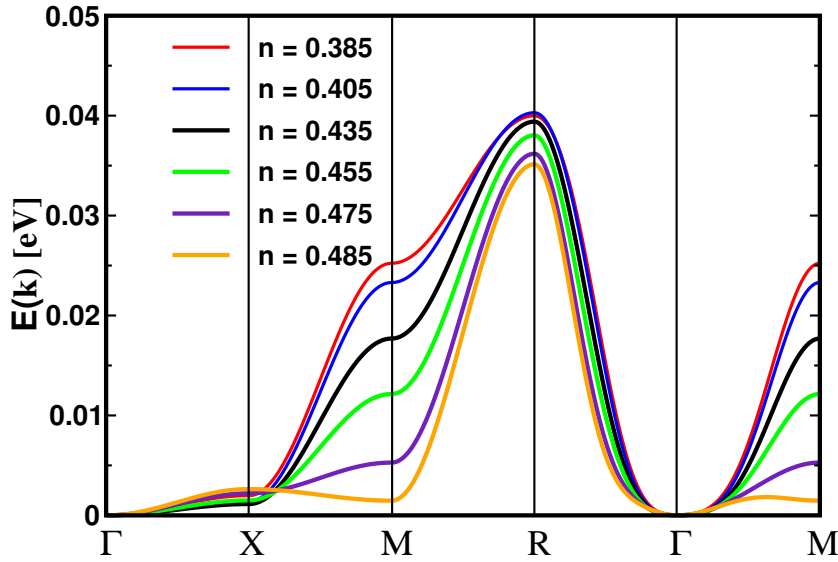


Abbildung 4.22: Magnonendispersion bei $T = 0$ K und $J = 0.2$ eV für verschiedene Elektronendichten n [5].

RKKY ist dieser Effekt nicht so stark ausgeprägt wie unter Verwendung der RPA-Näherung [72, 67]. Dennoch ist ein nichtgleichmäßiges Aufweichen der Spinwellenenergien für Elektronendichten zu beobachten, die sich in der Nähe einer ferromagnetischen Instabilität befinden.

Kapitel 5

Gadolinium

Durch Kombination einer vielteilchentheoretischen Auswertung des Kondo-Gitter-Modells mit einer *Ab-initio* Bandstrukturechnung wollen wir in diesem Kapitel sowohl die magnetischen als auch die elektronischen Eigenschaften von Gadolinium untersuchen. Um eine realistische Beschreibung der Substanz Gadolinium zu erreichen, werden wir die im Abschnitt 4.3 diskutierte Vielteilchentheorie auf das Mehr-Band-Kondo-Gitter-Modell erweitern. Darüber hinaus führen wir eine ASW-Bandstrukturechnung durch, um den Ein-Teilchen-Anteil des Modell-Hamilton-Operators festzulegen. Um dabei die Doppelzählung von relevanten Wechselwirkungen zu vermeiden, nutzen wir einen exakten Grenzfall des Kondo-Gitter-Modells aus.

5.1 Experimenteller Hintergrund

Gadolinium (Gd) zählt zu den Lanthaniden oder 4f-Metallen, die den Elementen Scandium (Sc) und Yttrium (Y) sehr ähnlich sind, und mit ihnen sehr oft als Seltene Erden bezeichnet werden. Die Elektronenkonfiguration des Seltenen-Erd-Atoms entspricht der stabilen Edelgaskonfiguration des Xenons mit zusätzlichen 4f-, 6s- und mitunter auch 5d-Anteilen. Für Gadolinium gilt $[\text{Xe}] 4f^7 5d^1 6s^2$.

Gd kristallisiert in der hexagonal dichtesten Kugelpackung (hcp) mit einer Gitterkonstante $a = 3.629 \text{ \AA}$ und dem Achsenverhältnis von $c/a = 1.597$ bei $T = 106 \text{ K}$. Dieses Verhältnis weicht also um 2.2% vom idealen Achsenverhältnis von $c/a = \sqrt{8/3} \approx 1.633$ ab. Der metallische Charakter wird durch die teilweise besetzten (5d-6s)-Bänder hervorgerufen. Die magnetischen Eigenschaften resultieren aus den halbgefüllten 4f-Schalen. Die Spinmomente der Elektronen in den 4f-Schalen koppeln aufgrund der Hund'schen Regeln zu einem Bahndrehimpuls von $L = 0$ und einem Spinmoment von $S = \frac{7}{2}$. Daraus ergibt sich für Gd ein Gesamtdrehimpuls von $J = S = \frac{7}{2}$.

$T_C[\text{K}]$	$\mu[\mu_B]$	$E_{4f\uparrow}[\text{eV}]$	$E_{4f\downarrow}[\text{eV}]$	$\Delta_2[\text{eV}]$
293.2	7.63	-7.44 ± 0.1	$+4.04 \pm 0.2$	0.85

Tabelle 5.1: Zusammenstellung einiger experimentellen Daten von Gd.

Gadolinium ist ein metallischer Ferromagnet, dessen Curie-Temperatur von $T_C = 293.2 \text{ K}$ [10] etwa bei Zimmertemperatur liegt. Das $T = 0 \text{ K}$ gemessene magnetische Moment $\mu(T = 0) = 7.63 \mu_B$ [11] weist einen Überschuß von $0.63 \mu_B$ zum theoretischen Gesamtmoment von $\mu(T = 0) = 7 \mu_B$ auf. Dieser Überschuß wird auf die induzierte Polarisation der (5d-6s)-Leitungselektronen zurückgeführt.

Die Photoemissionsspektroskopie ermöglicht die Untersuchung der Temperaturabhängigkeit der Austauschaufspaltung in den (5d-6s)-Leitungsbändern. Dabei wird insbesondere am Γ_4 -Punkt die Aufspaltung des Δ_2 -Bandes [11, 82, 83] spin-aufgelöst gemessen. Die Austauschaufspaltung beträgt 0.85 eV bei einer Temperatur von $T = 0.27 T_C$ [11] und nimmt mit zunehmender Temperatur monoton ab. Die energetische Lage der 4f-Zustände wurde mit Hilfe der kombinierten direkten (XPS) und inversen (BIS) Photoemissionsspektroskopie bestimmt. Die besetzten 4f- \uparrow -Zustände sind bei $E_{4f\uparrow} = -7.44 \pm 0.1 \text{ eV}$ unterhalb der Fermi-Energie gemessen worden. Die unbesetzten 4f- \downarrow -Zustände sind bei $E_{4f\downarrow} = +4.04 \pm 0.2 \text{ eV}$ oberhalb der Fermi-Energie zu finden [84].

5.2 Dichte-Funktional-Theorie

Der Festkörper stellt mit seinen Ionen bzw. Molekülen und Elektronen ein wechselwirkendes Vielteilchensystem dar. Die gesamte physikalische Beschreibung wird durch den Hamilton-Operator des Systems erfaßt.

$$\begin{aligned}
 H = & \sum_{i=1}^{N_e} \left(-\frac{\hbar^2}{2m_e} \Delta_i + \sum_{j=1}^{N_k} V_{\text{Ion}}(\mathbf{r}_i - \mathbf{R}_j) \right) + \frac{1}{2} \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0} \sum_{i \neq j}^{N_e} \frac{1}{|\mathbf{r}_i - \mathbf{r}_j|} + \\
 & + \sum_i^{N_k} -\frac{\hbar^2}{2M_i} \Delta_i + \frac{1}{2} \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0} \sum_{i \neq j}^{N_k} \frac{Z_i Z_j}{|\mathbf{R}_i - \mathbf{R}_j|}
 \end{aligned} \tag{5.1}$$

Dabei ist $V_{\text{Ion}}(\mathbf{r}_i - \mathbf{R}_j)$ die Coulomb-Wechselwirkung der Elektronen an den Orten \mathbf{r}_i mit den N_k Gitterionen an den Orten \mathbf{R}_j . Der zweite Summand, mit dem Faktor $\frac{1}{2}$, beschreibt die Coulomb-Wechselwirkung der N_e Elektronen untereinander. Die beiden letzten Terme bezeichnen die kinetische Energie und die Coulomb-Abstoßung der Kerne mit der Kernladungszahl Z_i bzw. Z_j . Wesentliche Vereinfachungen bei der Beschreibung des Vielteilchensystems (5.1) ergeben sich durch

die Born-Oppenheimer-Näherung [85]. Dabei wird die Bewegung der sehr viel leichteren Elektronen von der Bewegung der Atomkerne separiert. Dies ist gerechtfertigt, da sich die Elektronen viel schneller auf die Bewegung der Atomkerne einstellen können. Es ist somit ausreichend, das elektronische System im Feld der fixierten Atomkerne mit Hilfe der stationären Schrödinger-Gleichung zu untersuchen:

$$H\Psi(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2, \dots, \mathbf{r}_{N_e}) = E\Psi(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2, \dots, \mathbf{r}_{N_e}). \quad (5.2)$$

Eine direkte Bestimmung der Wellenfunktion $\Psi(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2, \dots, \mathbf{r}_{N_e})$ aus der stationären Schrödinger-Gleichung erwies sich bisher, außer für kleine Systeme, als nicht praktikabel. Statt jedoch ein System mit Hilfe einer Funktion von N_e Koordinaten zu beschreiben, lassen sich, wie von Hohenberg und Kohn [86, 87] gezeigt wurde, die Grundzustandseigenschaften eines wechselwirkenden Systems ausschließlich als Funktional der Einteilchendichte $\rho(\mathbf{r})$ erfassen. Der Übergang von einer Beschreibung mittels einer Wellenfunktion, die von N_e Koordinaten abhängt, zu einer Beschreibung durch die Einteilchendichte $\rho(\mathbf{r})$ stellt eine beträchtliche Vereinfachung dar, da die Einteilchendichte nur noch von einer Koordinate abhängt.

$$\rho(\mathbf{r}) = N_e \int d\mathbf{r}_2 \cdots \int d\mathbf{r}_{N_e} |\Psi^*(\mathbf{r}, \mathbf{r}_2 \dots \mathbf{r}_{N_e})|^2 \quad (5.3)$$

Die Grundlagen der Dichte-Funktional-Theorie (DFT) sind die sogenannten Hohenberg-Kohn-Theoreme [86], die für ein beliebiges externes Potential $v_{\text{ext}}(\mathbf{r})$ wie folgt lauten:

1. Das externe Potential $v_{\text{ext}}(\mathbf{r})$ ist für einen nichtentarteten Grundzustand $\Psi(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2, \dots, \mathbf{r}_{N_e})$ des Systems bis auf eine additive Konstante ein eindeutig bestimmtes Funktional von $\rho(\mathbf{r})$.
2. Das Energiefunktional $E[\rho]$ nimmt bei Variation von ρ sein Minimum bei der Grundzustandsdichte ρ_0 an. Sei $\rho'(\mathbf{r}) \geq 0$ eine Testdichte und $\int d\mathbf{r} \rho'(\mathbf{r}) = N_e$, dann gilt $E[\rho_0] \leq E[\rho']$.

Damit ist klar, daß die Dichte des Grundzustandes und die Wellenfunktion über ein Variationsverfahren bestimmt werden können. Nach dem zweiten Theorem gelangt man zur Grundzustandsenergie durch Minimierung des Funktionals $E[\rho]$ bezüglich der Elektronendichte unter der Nebenbedingung $\int d^3r \rho(\mathbf{r}) = N_e$:

$$\delta \{ E[\rho] - \mu \int d^3r \rho(\mathbf{r}) \} = 0. \quad (5.4)$$

Eine direkte Anwendung des Variationsverfahrens scheitert jedoch an der Unkenntnis der expliziten Form des Energiefunktionals $E[\rho]$.

$$E[\rho] = E^{\text{kin}}[\rho] + E^{\text{ext}}[\rho] + E^{\text{ee}}[\rho] \quad (5.5)$$

Inbesondere sind die Funktionale der kinetischen Energie $E^{\text{kin}}[\rho]$ und der elektronischen Wechselwirkung $E^{\text{ee}}[\rho]$ unbekannt. Um dennoch eine realistische Beschreibung des Vielteilchensystems zu ermöglichen, wurde in [87] ein Referenzsystem – das homogene Elektronengas – eingeführt, von dem das Funktional der kinetischen Energie bekannt ist.

$$E[\rho] = E_0^{\text{kin}}[\rho] + E^{\text{ext}}[\rho] + E^{\text{xc}}[\rho] \quad (5.6)$$

In dem mit Hilfe des Referenzsystems umgeformten Energiefunktional ist $E^{\text{xc}}[\rho]$ das Austauschkorrelationsfunktional. Es enthält nicht nur die elektronische Wechselwirkung, sondern auch die Korrekturen zum Funktional der kinetischen Energie und zur Selbstenergie. Die Variation des obigen Energiefunktional führt auf die sogenannten Kohn-Sham-Gleichungen für die Funktionen $\varphi_i(\mathbf{r})$ mit den Parametern ε_i [87, 88, 89].

$$\left(-\frac{\hbar^2}{2m_e} \Delta + v_{\text{ext}}(\mathbf{r}) + \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0} \int \frac{\rho(\mathbf{r}')}{|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|} d\mathbf{r}' + v^{\text{xc}}[\rho](\mathbf{r}) \right) \varphi_i(\mathbf{r}) = \varepsilon_i \varphi_i(\mathbf{r}). \quad (5.7)$$

$v^{\text{xc}}[\rho](\mathbf{r})$ ist das Austauschkorrelationspotential

$$v^{\text{xc}}[\rho](\mathbf{r}) = \frac{\delta E^{\text{xc}}[\rho]}{\delta \rho(\mathbf{r})}. \quad (5.8)$$

Die Funktionen $\varphi_i(\mathbf{r})$ (Kohn-Sham-Orbitale) und die dazugehörigen Parameter ε_i , die sich aus der Lösung von (5.7) ergeben, beziehen sich auf das Referenzsystem. Sie dürfen also nicht mit den wahren Wellenfunktionen und Eigenenergien des wechselwirkenden Systems verwechselt werden.

Die Kohn-Sham-Gleichungen (5.7) lassen sich iterativ in einem selbstkonsistenten Verfahren lösen. Während in einem herkömmlichen quantenmechanischen Problem eine Näherung für die Wellenfunktion gesucht werden muß, ist es in der DFT das Austauschkorrelationsfunktional, für das Näherungen gefunden werden müssen. Nach Einführung des effektiven Potentials $v^{\text{eff}}(\mathbf{r})$

$$v^{\text{eff}}[\rho](\mathbf{r}) = v_{\text{ext}}(\mathbf{r}) + \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0} \int \frac{\rho(\mathbf{r}')}{|\mathbf{r} - \mathbf{r}'|} + v^{\text{xc}}[\rho](\mathbf{r}) \quad (5.9)$$

beschreiben die Kohn-Sham-Gleichungen (5.7) die Bewegung von nichtwechselwirkenden Elektronen in einem effektiven äußeren Potential $v^{\text{eff}}(\mathbf{r})$:

$$\left(-\frac{\hbar^2}{2m_e} \Delta + v^{\text{eff}}[\rho](\mathbf{r}) \right) \varphi_i(\mathbf{r}) = \varepsilon_i \varphi_i(\mathbf{r}). \quad (5.10)$$

Die Elektronendichte $\rho(\mathbf{r})$ wird durch Summation über die besetzten Kohn-Sham-Orbitale $\varphi_i(\mathbf{r})$ gewonnen:

$$\rho(\mathbf{r}) = \sum_i |\varphi_i(\mathbf{r})|^2. \quad (5.11)$$

5.2.1 Die Lokale-Dichte-Näherung

In den Ausführungen des Abschnittes 5.2 sind alle auf den Grundzustand bezogenen Betrachtungen exakt. Der praktische Umgang mit Gleichung (5.6) verlangt dennoch die explizite Kenntnis des Austauschkorrelationsfunktionals $E^{\text{xc}}[\rho]$. Da es für ein wechselwirkendes System unbekannt ist, sind an dieser Stelle Näherungen unvermeidbar. Die einfachste Näherung zum Austauschkorrelationsfunktional wurde von Kohn und Sham [87] vorgeschlagen und bestand in der Verwendung der Austauschkorrelationsenergie $\epsilon_{\text{xc}}(\rho(\mathbf{r}))$ des homogenen Elektronengases der Elektronendichte $\rho(\mathbf{r})$ zur Beschreibung eines wechselwirkenden Systems. Demzufolge ist das Austauschkorrelationsfunktional in der sogenannten Lokale-Dichte-Näherung (LDA) durch

$$E_{\text{xc}}^{\text{LDA}}[\rho] = \int d^3r \epsilon_{\text{xc}}(\rho(\mathbf{r}))\rho(\mathbf{r}) \quad (5.12)$$

gegeben. Die Austauschkorrelationsenergie eines homogenen Elektronengases wurde in [90] mittels Monte-Carlo-Methoden berechnet. Darüber hinaus ist eine Parametrisierung von Perdew und Zunger in [91] zu finden.

Die LDA kann zu einer lokalen Spin-Dichte-Näherung (LSDA) [92, 93, 88, 89] erweitert werden. Anstelle der spinunabhängigen Elektronendichte $\rho(\mathbf{r})$ müssen nun die spinabhängigen Elektronendichten $\rho_{\uparrow}(\mathbf{r})$ und $\rho_{\downarrow}(\mathbf{r})$ als unabhängige Funktionen betrachtet werden:

$$E_{\text{xc}}^{\text{LSDA}}[\rho_{\uparrow}, \rho_{\downarrow}] = \int d^3r \epsilon_{\text{xc}}(\rho_{\uparrow}(\mathbf{r}), \rho_{\downarrow}(\mathbf{r}))\rho(\mathbf{r}). \quad (5.13)$$

Als Ergebnis dieser Verallgemeinerung wird das Austauschkorrelationspotential $v^{\text{xc}}(\mathbf{r})$ ebenfalls spinabhängig

$$v_{\text{xc}}^{\sigma}([\rho_{\uparrow}, \rho_{\downarrow}]; \mathbf{r}) = \frac{\delta E_{\text{xc}}^{\text{LSDA}}[\rho_{\uparrow}, \rho_{\downarrow}]}{\delta \rho_{\sigma}(\mathbf{r})}, \quad (5.14)$$

wobei in [92, 93] gute Abschätzungen des spinabhängigen Austauschkorrelationspotentials angegeben wurden. Es sei hier noch angemerkt, daß die LDA (LSDA) auch für solche Systeme brauchbare Resultate liefert, deren Dichten $\rho(\mathbf{r})$ keine langsamen Veränderlichen des Ortes sind. Korrekturen bezüglich der inhomogenen Dichteviation werden durch die GGA (*generalized gradient approximation*) berücksichtigt. Dadurch erhält die Austauschkorrelationsenergie $\epsilon_{\text{xc}}(\rho(\mathbf{r}))$ ein zusätzliches Argument, den Gradienten der Elektronendichte $\nabla\rho(\mathbf{r})$.

Die LDA+ U [94, 95, 89] stellt einen weiteren Versuch dar, die LDA auf Systeme mit teilweise gefüllten d- oder f-Schalen, wie z.B. Übergangsmetalle oder Seltene Erden, zu erweitern.

5.2.2 Bandstrukturechnung

Wie bereits in 5.2 erwähnt, müssen die Kohn-Sham-Gleichungen gelöst werden, um die Elektronendichte $\rho(\mathbf{r})$ und das effektive Potential $v^{\text{eff}}(\mathbf{r})$ selbstkonsistent zu bestimmen. Zu diesem Zweck, sind verschiedene Ansätze entwickelt worden. Der am meisten verbreitete Ansatz ist die sogenannte *Muffin-Tin*-Näherung (*muffin-tin approximation* (MTA)). Sie wurde von Slater [96, 97] entwickelt, um die Bewegung von Elektronen im periodischen Gitterpotential näherungsweise zu behandeln. In der MTA besitzt das Gitterpotential sphärische Symmetrie innerhalb von nichtüberlappenden Kugeln (*muffin-tin sphere*) um die Atome und ist konstant außerhalb der *Muffin-Tin* Kugeln. Für die Wellenfunktion kann daher innerhalb der *Muffin-Tin*-Kugel die radiale Schrödinger-Gleichung numerisch gelöst werden. Für den zwischenatomaren Bereich werden ebene Wellen angesetzt. Die korrekte Lösung ergibt sich dann durch stetiges Anstückeln an der *Muffin-Tin*-Kugeloberfläche. Dieses Verfahren wird als *augmented plane wave* (APW-Methode) [98] in der Literatur bezeichnet.

Die radiale Schrödinger-Gleichung in der APW-Methode liefert für die Wellenfunktionen Lösungen, die energieabhängig sind, und daher einen enormen numerischen Rechenaufwand erfordern. In dem interessierenden Energiebereich (Valenzelektronen) ist die Energieabhängigkeit der Wellenfunktion schwach, wie in [99, 100] bemerkt wurde. Daher haben Williams, Kübler und Gellat [101] eine Linearisierung der Energieabhängigkeit der Wellenfunktion und eine Modifikation der APW-Methode vorgeschlagen. Die Modifikation bestand darin, für den interatomaren Bereich keine ebene Wellen mehr zu verwenden. Dafür wurde für die Lösung der Schrödinger-Gleichung eine Linearkombination aus atomaren Orbitalen [101] verwendet, wobei auch hier Stetigkeit und Differenzierbarkeit an der *muffin-tin* Kugeloberfläche gefordert wird. Die daraus resultierende *augmented spherical wave* (ASW-Methode) zeichnet sich durch einen geringen numerischen Rechenaufwand aus und kann deshalb auf realistischere und komplexere Systeme angewandt werden.

In dieser Arbeit haben wir die ASW-Methode verwendet, wie sie in [101, 102] implementiert wurde, um die Gd-Bandstruktur zu berechnen.

In der Abbildung 5.1 ist zu erkennen, daß die energetische Position der 4f-Zustände mit denen aus der Tabelle 5.1 nicht übereinstimmt. Dies kann auf die Schwäche der LSDA zurückgeführt werden, stark korrelierte Systeme angemessen zu beschreiben. Die 4f-Zustände in Gd weisen dem Experiment nach eine spinabhängige Aufspaltung in der Größenordnung von 11.4 eV auf. Die falsche Lage der 4f- \downarrow -Zustände führt zu höheren Werten der Zustandsdichte an der Fermi-Kante. Daraus resultiert ein unrealistisch erhöhter Wert des γ -Koeffizienten der elektronischen Wärmekapazität. Schlimmer jedoch ist die Tatsache, daß dadurch die LSDA die antiferromagnetische Konfiguration als den Grundzustand vorher-

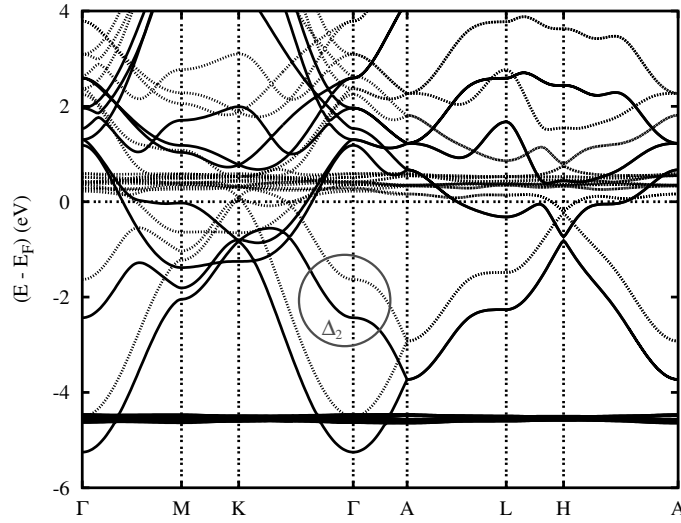


Abbildung 5.1: ASW-Bandstruktur von Gd als Funktion des Wellenvektors. Durchgezogene Linie \uparrow -Zustände und punktierte Linie \downarrow -Zustände. Die 4f-Zustände haben eine flache Dispersion [9].

sagt [103, 94, 68], im Widerspruch zum Experiment [10].

Zur Beseitigung dieser Inkonsistenz zwischen der LSDA und dem Experiment werden die 4f- \downarrow -Zustände als Rump fzustände [104, 68] behandelt, indem die Hybridisierung der 4f-Zustände mit den Valenzzuständen vernachlässigt wird. Neben dieser Methode wird auch sehr oft eine effektive Coulomb-Wechselwirkung, das Hubbard- U in die LDA eingeführt, um eine korrekte Beschreibung der energetischen Position der 4f-Zustände zu erreichen. Die LDA+ U [94, 105, 68] kann somit nicht mehr als eine reine *Ab-initio*-Theorie betrachtet werden.

Nach den detaillierten Untersuchungen in [68] haben die unterschiedlichen Behandlungen der 4f-Zustände kaum einen Einfluß auf die (5d-6s)-Zustände. Deshalb haben wir der Einfachheit halber die 4f-Elektronen als Valenz-Elektronen betrachtet und dazu einen ferromagnetischen Grundzustand angenommen. In die vielteilchentheoretische Auswertung gehen ausschließlich die (5d-6s)-Zustände ein.

5.3 Mehr-Band-Kondo-Gitter-Modell

Ein wichtiger Schritt bei der Kombination einer vielteilchentheoretische Auswertung mit realistischen Bandstrukturechnungen ist die richtige Wahl des Modell-Hamilton-Operators. Dieser sollte im Idealfall aus einem Ein-Teilchen-Beitrag H_0

und einem Wechselwirkungsterm H_1 bestehen:

$$H = H_0 + H_1. \quad (5.15)$$

In unserem Fall sollte H_1 alle Beiträge zur Wechselwirkung enthalten, die für die Beschreibung des betrachteten Systems charakteristisch sind. Dies sind vor allem die elektronischen Korrelationen, die sowohl den magnetischen Eigenschaften als auch dem Quasiteilchen-Spektrum ihre charakteristische Temperaturabhängigkeit verleihen.

Wir wollen die Diskussion des Modell-Hamilton-Operators (5.15) mit dem Ein-Teilchen-Anteil H_0 beginnen. Dieser beinhaltet die kinetische Energie der (5d-6s)-Elektronen und deren Wechselwirkung mit dem Gitterpotential:

$$H_0 = \sum_{ij\sigma} \sum_{mm'} T_{ij}^{mm'} c_{im\sigma}^+ c_{jm'\sigma}. \quad (5.16)$$

$T_{ij}^{mm'}$ sind die Hüpfmatrixelemente, wobei hier der Hüpfprozeß eines Elektrons, im Gegensatz zum Ein-Band-Fall (4.1), von einem Wechsel des Orbitals ($m \rightarrow m'$) begleitet werden kann. Der Wechselwirkungsterm H_1 , der die charakteristische Temperaturabhängigkeit prägt, hat seinen Ursprung in der Coulomb-Wechselwirkung. Wir beschränken die Coulomb-Wechselwirkung auf eine lokale Wechselwirkung zwischen verschiedenen Bändern [106, 107, 9]:

$$H_1 = \frac{1}{2} \sum_{L_1 \dots L_4} \sum_{i\sigma\sigma'} U_{L_1 \dots L_4} c_{iL_1\sigma}^+ c_{iL_2\sigma'}^+ c_{iL_3\sigma'} c_{iL_4\sigma}. \quad (5.17)$$

L_1, \dots, L_4 bezeichnen die verschiedenen Bänder und $U_{L_1 \dots L_4}$ sind die Coulomb-Matrixelemente:

$$U_{L_1 L_2 L_4 L_3} = \frac{e^2}{4\pi\epsilon_0} \int d^3r_1 \int d^3r_2 \Psi_{L_1}^*(\mathbf{r}_1) \Psi_{L_2}^*(\mathbf{r}_2) \frac{1}{|\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2|} \Psi_{L_4}(\mathbf{r}_1) \Psi_{L_3}(\mathbf{r}_2). \quad (5.18)$$

In Systemen wie Gd gibt es auf der einen Seite die 4f-Zustände, die kaum eine Dispersion zeigen. Diese können in sehr guter Näherung als streng lokalisiert betrachtet werden. Auf der anderen Seite haben wir es mit den deutlich breiteren (5d-6s)-Bändern zu tun. Aus physikalischer Sicht erscheint es sinnvoll, eine Unterscheidung zwischen den 4f- und den (5d-6s)-Zuständen vorzunehmen, da sich Elektronen in den schmaleren 4f-Bändern anders verhalten als solche, die breitere Bänder besetzen. Wir betrachten daher die Coulomb-Wechselwirkung zwischen diesen zwei Gruppen von Elektronen und beschränken die Coulomb-Streuung auf jeweils zwei Bänder:

$$H_1 = \frac{1}{2} \sum_{LL'} \sum_{i\sigma\sigma'} \left\{ U_{LL'} c_{iL\sigma}^+ c_{iL'\sigma'}^+ c_{iL'\sigma'} c_{iL\sigma} + J_{LL'} c_{iL\sigma}^+ c_{iL'\sigma'}^+ c_{iL\sigma} c_{iL'\sigma'} + J_{LL'}^* c_{iL\sigma}^+ c_{iL'\sigma'}^+ c_{iL'\sigma'} c_{iL\sigma} \right\}. \quad (5.19)$$

Nun können wir die Indizes L und L' entweder den 4f-Zuständen ($L \rightarrow f$) oder den (5d-6s)-Zuständen ($L \rightarrow m$) zuordnen. Damit läßt sich die Wechselwirkung (5.19) entsprechend dieser Aufteilung in drei Beiträge zerlegen [9]:

$$H_1 = H_{dd} + H_{ff} + H_{df}. \quad (5.20)$$

H_{dd} beschreibt die Coulomb-Wechselwirkung der Elektronen untereinander in den breiten (5d-6s)-Bändern. Der aus H_{dd} stammende physikalische Einfluß auf das gesamte System ist gering. Er wird hinreichend gut durch die Bandstrukturrechnung berücksichtigt. Die 4f-Zustände in Gadolinium liefern mit $S = \frac{7}{2}$ den größten Beitrag zum magnetischen Moment und können zudem in sehr guter Näherung als streng lokalisiert betrachtet werden. Als Teil des Modell-Hamilton-Operators spielt H_{ff} jedoch keine Rolle. Der wichtigste Beitrag zum Modell-Hamilton-Operator ist durch die Wechselwirkung zwischen den itineranten (5d-6s)-Elektronen und den stark lokalisierten 4f-Elektronen gegeben:

$$\begin{aligned} H_{df} = & \sum_{imf\sigma\sigma'} \{ U_{mf} c_{im\sigma}^+ c_{if\sigma'}^+ c_{if\sigma'} c_{im\sigma} + J_{mf} c_{im\sigma}^+ c_{if\sigma'}^+ c_{im\sigma'} c_{if\sigma} \\ & + \frac{1}{2} J_{mf}^* c_{im\sigma}^+ c_{im\sigma'}^+ c_{if\sigma'} c_{if\sigma} + \frac{1}{2} J_{fm}^* c_{if\sigma}^+ c_{if\sigma'}^+ c_{im\sigma'} c_{im\sigma} \}. \end{aligned} \quad (5.21)$$

Die 4f-Schale in Gd^{3+} ist mit sieben Elektronen halbgefüllt. Diese Elektronen verteilen sich auf sieben der vierzehn Subbänder so, daß keines davon doppelt besetzt ist. Daher liefern die letzten zwei Terme in (5.21) keinen Beitrag. Die verbleibenden Beiträge können wir mit Hilfe der Gleichung (2.12) in folgende Form umschreiben:

$$H_{df} = -\frac{2}{\hbar^2} \sum_{imf} J_{mf} \boldsymbol{\sigma}_{im} \cdot \boldsymbol{\sigma}_{if} + \sum_{mf} (U_{mf} - \frac{1}{2} J_{mf}) n_{im} n_{if}. \quad (5.22)$$

Der zweite Term in (5.22) stellt keineswegs eine d-f-Wechselwirkung dar, da n_f – die Anzahl der 4f-Elektronen – den festen Wert $n_f = 7$ annimmt. Dieser Term bewirkt nur eine konstante Verschiebung der (5d-6s)-Zustände und wird hinreichend gut durch die Renormierung des Ein-Teilchen-Beitrages zum Modell-Hamilton-Operator berücksichtigt.

Mit der Definition des Spinoperators \mathbf{S}_i der lokalisierten Zustände

$$\mathbf{S}_i = \sum_{if} \boldsymbol{\sigma}_{if} \quad (5.23)$$

können wir letztlich die d-f-Wechselwirkung in einer der Gleichung (2.11) äquivalenten Form schreiben:

$$H_{df} = -\frac{J}{\hbar^2} \sum_{im} \boldsymbol{\sigma}_{im} \cdot \mathbf{S}_i. \quad (5.24)$$

Hierfür haben wir angenommen, daß die Interbandaustauschwechselwirkung J_{mf} unabhängig von der speziellen Wahl der Indizes m und f ist:

$$J_{mf} = \frac{1}{2}J. \quad (5.25)$$

Insgesamt ist der Wechselwirkungsterm des Modell-Hamilton-Operators mit dem des bereits eingeführten Ein-Band-Kondo-Gitter-Modells (2.11) formal äquivalent.

$$H = \sum_{ij\sigma} \sum_{mm'} T_{ij}^{mm'} c_{im\sigma}^+ c_{jm'\sigma} - \frac{J}{\hbar^2} \sum_{im} \sigma_{im} \cdot \mathbf{S}_i \quad (5.26)$$

Der Mehr-Band-Charakter wird im Wechselwirkungsterm durch eine einfache Summation über die beteiligten Bänder berücksichtigt. Wesentliche Unterschiede ergeben sich im Ein-Teilchen-Anteil, wobei nun die Hüpfmatrixelemente $T_{ij}^{mm'}$ nichtdiagonale Beiträge in den Bänderindizes m und m' enthalten.

Zur Untersuchung der Ein-Teilchen-Anregungen des Mehr-Band-Kondo-Gitter-Modells verwenden wir hier die Verallgemeinerung der Ein-Teilchen-Green-Funktion auf das Mehr-Band-System:

$$\hat{G}_{\mathbf{k}\sigma}(E) = \hbar \left((E + \mu) \mathbb{1} - \hat{T}_{\mathbf{k}} - \hat{M}_{\mathbf{k}\sigma}(E) \right)^{-1}, \quad (5.27)$$

wobei die Selbstenergie-Matrix $\hat{M}_{\mathbf{k}\sigma}(E)$ durch die Wechselwirkung (5.24) des Mehr-Band-Kondo-Gitter Modells (5.26) bestimmt wird:

$$\langle\langle [c_{\mathbf{k}m\sigma}, H_1]_-; c_{\mathbf{k}m'\sigma}^+ \rangle\rangle_E = \sum_{m''} M_{\mathbf{k}\sigma}^{mm''}(E) G_{\mathbf{k}\sigma}^{m''m'}(E). \quad (5.28)$$

Die berechnete Spektraldichte $S_{\mathbf{k}m\sigma}(E)$ kann, bis auf Übergangsmatrixelemente, für einen Vergleich mit Photoemissionsexperimenten herangezogen werden.

$$S_{\mathbf{k}m\sigma}(E - \mu) = -\frac{1}{\pi} \text{Im} G_{\mathbf{k}\sigma}^{mm}(E - \mu) \quad (5.29)$$

Eine weitere wichtige physikalische Größe ist die Quasiteilchen-Zustandsdichte

$$\rho_{m\sigma}(E) = \frac{1}{N\hbar} \sum_{\mathbf{k}} S_{\mathbf{k}m\sigma}(E - \mu), \quad (5.30)$$

die empfindlich auf Korrelationseffekte reagiert. Aus ihr gewinnen wir auch die Elektronendichte n , die für das Mehr-Band-System unter Verwendung des Spektraltheorems (3.18) wie folgt lautet:

$$n = \sum_{m\sigma} \langle n_{m\sigma} \rangle = \sum_{m\sigma} \int_{-\infty}^{+\infty} dE f_-(E) \rho_{m\sigma}(E). \quad (5.31)$$

Analog zum Ein-Band-Kondo-Gitter-Modell (Unterabschnitt 4.2.1) ist das Mehr-Band-Kondo-Gitter-Modell in der ferromagnetischen Sättigung und für leere Bänder exakt lösbar. Unter den gleichen Voraussetzungen wie in 4.2.1 ist die Ein-Teilchen-Green-Funktion (5.27) exakt berechenbar. Da sich aber hierbei die Rechenschritte im wesentlichen von denen im Unterabschnitt 4.2.1 nicht unterscheiden, beschränken wir uns darauf, die Ergebnisse für das Mehr-Band-Kondo-Gitter-Modell anzugeben (Anhang F) [9]:

$$\hat{M}_\sigma(E) = -\frac{1}{2}Jz_\sigma S\mathbb{1} + \delta_{\sigma\downarrow} \frac{\frac{1}{2\hbar}J^2 S \hat{G}_0(E + \frac{1}{2}JS)}{\mathbb{1} - \frac{1}{2\hbar}J \hat{G}_0(E + \frac{1}{2}JS)}. \quad (5.32)$$

$\hat{G}_0(E)$ ist die freie, \mathbf{k} -summierte Ein-Teilchen-Green-Funktion:

$$\hat{G}_0(E) = \frac{\hbar}{N} \sum_{\mathbf{k}} (E\mathbb{1} - \hat{T}_{\mathbf{k}} + i0^+)^{-1}. \quad (5.33)$$

Der Grenzfall der ferromagnetischen Sättigung wird später im Unterabschnitt 5.3.2 bei der Kombination der vielteilchentheoretischen Auswertung mit der LDA-ASW-Bandstrukturechnung nützlich sein.

5.3.1 Modifizierte RKKY-Wechselwirkung

Für die näherungsweise Behandlung des lokalisierten Spinsystems soll die Erweiterung der in 4.3.2 vorgestellten Theorie für das Ein-Band-Kondo-Gitter-Modell auf das Mehr-Band-Kondo-Gitter-Modell Verwendung finden. Weil die Herleitung hierfür keine grundsätzlich neuen Elemente enthält, werden wir uns darauf beschränken, die wichtigsten Schritte anzugeben.

Ziel ist es, den Wechselwirkungsterm (5.24) durch Bildung des Erwartungswertes über die elektronischen Freiheitsgrade auf einen effektiven Hamilton-Operator vom Heisenberg-Typ abzubilden:

$$H_{df} = -\frac{J}{\hbar^2} \sum_{im} \sigma_{im} \cdot \mathbf{S}_i \rightarrow -\sum_{ij} \hat{J}_{ij} \mathbf{S}_i \cdot \mathbf{S}_j. \quad (5.34)$$

Hierfür definieren wir analog zu (4.71) eine effektive Greensche Funktion

$$G_{\mathbf{k}\sigma', \mathbf{k}+\mathbf{q}\sigma}^{mm'}(E) = \langle \langle c_{\mathbf{k}m\sigma'}^+; c_{\mathbf{k}+\mathbf{q}m'\sigma}^+ \rangle \rangle_E^{(s)}, \quad (5.35)$$

aus der der Erwartungswert $\langle c_{\mathbf{k}+\mathbf{q}m'\sigma}^+ c_{\mathbf{k}m\sigma'} \rangle^{(s)}$ mit Hilfe der eingeschränkten Mittelungsprozedur (4.69) zu bestimmen ist. Alle weiteren Rechenschritte sind mit

denen aus dem Abschnitt 4.3.2 äquivalent. Zu beachten ist nur die Tatsache, daß wir es hier mit nichtvertauschbaren Matrizen zu tun haben. Wir können nun die effektiven Austauschintegrale in Analogie zu (4.89) angeben. Anstelle der freien Greenschen Funktion (4.75) tritt die freie Greensche Matrix-Funktion (5.36) auf:

$$\hat{G}_{\mathbf{k}}^{(0)}(E) = \hbar(E + \mu - \hat{T}_{\mathbf{k}})^{-1}. \quad (5.36)$$

Für das Mehr-Band-Kondo-Gitter-Modell können wir nun mit (5.36) die effektiven Austauschintegrale wie folgt notieren:

$$\hat{J}_{ij} = \frac{J^2}{8N\pi} \sum_{\mathbf{k}q\mu\sigma} e^{-iq(\mathbf{R}_i - \mathbf{R}_j)} \int_{-\infty}^{+\infty} dE f_{-}(E) \text{Im} \left[\left(\hat{G}_{\mathbf{k}\sigma}(E - \mu) \hat{G}_{\mathbf{k}+\mathbf{q}}^{(0)}(E - \mu) \right)^{mm} + \left(\hat{G}_{\mathbf{k}}^{(0)}(E - \mu) \hat{G}_{\mathbf{k}+\mathbf{q}\sigma}(E - \mu) \right)^{mm} \right]. \quad (5.37)$$

Mit diesen effektiven Austauschintegralen \hat{J}_{ij} ist der resultierende effektive Heisenberg Hamilton-Operator mit (4.67) identisch. Daher können die Auswertungen aus dem Unterabschnitt 4.3.2 übernommen werden. Die Curie-Temperatur T_C und die Magnetisierung $\langle S^z \rangle$ können wir deshalb nach wie vor mit Hilfe der Gleichungen (4.107) und (4.100) selbstkonsistent bestimmen, wenn wir dafür die effektiven Austauschintegrale (5.37) verwenden.

5.3.2 Kombination mit der ASW-Bandstruktur

Zur Kombination der vielteilchentheoretischen Auswertung mit der LDA-ASW-Bandstrukturrechnung sind folgende Schritte notwendig. Zunächst führen wir eine selbstkonsistente Bandstrukturrechnung durch, die uns die Ein-Teilchen-Energien $T_{\mathbf{k}}^{mm'}$ (LDA) liefert. Damit sind die Hüpfmatrixelemente $T_{ij}^{mm'}$ bzw. die Ein-Teilchen-Energien $T_{\mathbf{k}}^{mm'}$ des Modell-Hamilton-Operators (5.26) festgelegt. In einem letzten Schritt werten wir das Vielteilchenproblem aus, um daraus den Einfluß der Wechselwirkung (5.24) auf die Quasiteilchen-Energien in Abhängigkeit von der Temperatur zu untersuchen.

Bei der praktischen Umsetzung der oben erwähnten Schritte werden wir aber mit dem Problem der Doppelzählung von Wechselwirkungsbeiträgen konfrontiert. Explizit berücksichtigen wir die Wechselwirkung durch den Term H_1 des Modell-Hamilton-Operators. Dazu sind aber, wie wir bereits bei der Vorstellung des Modell-Hamilton-Operators (Abschnitt 5.3) erwähnt haben, Wechselwirkungsbeiträge in den $T_{ij}^{mm'}$ bzw. $T_{\mathbf{k}}^{mm'}$ enthalten. Dadurch kommt es zu einer Doppelzählung von Wechselwirkungsbeiträgen.

Wir können aber den Grenzfall der *ferromagnetischen Sättigung* ausnutzen, um die Doppelzählung von Wechselwirkungsbeiträgen zu vermeiden. Dabei erkennen wir, daß das \uparrow -Spektrum lediglich starr um den Betrag $-\frac{1}{2}JS$ gegenüber dem

wechselwirkungsfreien Fall verschoben ist. Dies kann aus den Gleichungen (5.32) bzw. (4.39) entnommen werden.

Obwohl die starre Verschiebung des \uparrow -Spektrums in aller Strenge nur für leere Bänder ($n = 0$) [61, 107, 108] gilt, können wir diese Aussage auch auf die zu einem Viertel besetzten Bänder des Gadoliniums erweitern. Sie wird weitgehend durch die Modellrechnungen aus [4, 5] bestätigt. Deshalb können wir in sehr guter Näherung das ($T = 0$ K, $\sigma = \uparrow$)-LDA-ASW-Spektrum (Abbildung 5.1) als den Ein-Teilchen-Anteil für unsere Rechnungen verwenden.

Die falsche energetische Lage der 4f- \downarrow -Zustände spielt für die weiteren Untersuchungen keine Rolle, da wir hier nur das \uparrow -Spektrum ohne die 4f-Zustände benötigen. Die 4f-Zustände, die bekanntlich für das ferromagnetische Verhalten von Gadolinium verantwortlich sind, werden in unserem Modell-Hamilton-Operator (5.26) durch den Spinoperator S_i simuliert. Wir lassen damit Besetzungsfluktuationen in den 4f-Zuständen unberücksichtigt. Aufgrund der energetischen Lage der 4f- \uparrow -Zustände weit unterhalb der Fermi-Energie ist dieses Vorgehen gerechtfertigt.

Der verbleibende Parameter des Modell-Hamilton-Operators ist die Austauschkonstante J , die hier nicht wie sonst als freier Parameter betrachtet wird. Die Austauschkonstante J wollen wir aus der LDA-ASW-Bandstrukturrechnung entnehmen. Dazu stützen wir uns auf die Tatsache, daß die LSDA in sehr guter Näherung mit einem *Mean-Field*-Ansatz [101, 109] vergleichbar ist. Demzufolge beträgt die Austauschspaltung in Abbildung 5.1 zwischen (5d-6s)- \uparrow - und (5d-6s)- \downarrow -Zuständen gerade $\Delta = JS$.

Wir haben jedoch feststellen müssen, daß die Austauschspaltung eine schwache Energie- und Wellenzahlabhängigkeit aufweist. Um diesen beiden Effekten Rechnung zu tragen, haben wir die Bestimmung der Austauschspaltung durch Mittelung über N_p verschiedene Peaks in der LDA-ASW-Zustandsdichte ermittelt:

$$J = \frac{1}{N_p S} \sum_p \Delta_p = 0.3 \text{ eV}. \quad (5.38)$$

Aufgrund der geringen Abweichung der Austauschspaltung in den 5d- und 6s-Bändern verzichten wir darauf, diese getrennt zu behandeln. In Abbildung 5.2 [9] ist ein Vergleich der spinabhängigen Quasiteilchen-Zustandsdichte dargestellt, wie wir sie aus der LDA-ASW-Rechnung und aus der vielteilchentheoretischen Auswertung (MCDA) erhalten haben. Eine fast perfekte Übereinstimmung ist in den \uparrow -Zustandsdichten zu sehen. Dies ist eine Bestätigung des oben diskutierten Verfahrens, die Doppelzählung von Wechselwirkungsbeiträgen zu vermeiden. Trotz allem sind kleine Abweichungen zwischen der LDA-ASW-Rechnung und der MCDA vorhanden, die zum Teil auf die endliche Besetzung der (5d-6s)-Bänder zurückgeführt werden können. Hinzu kommt die vereinfachende Annah-

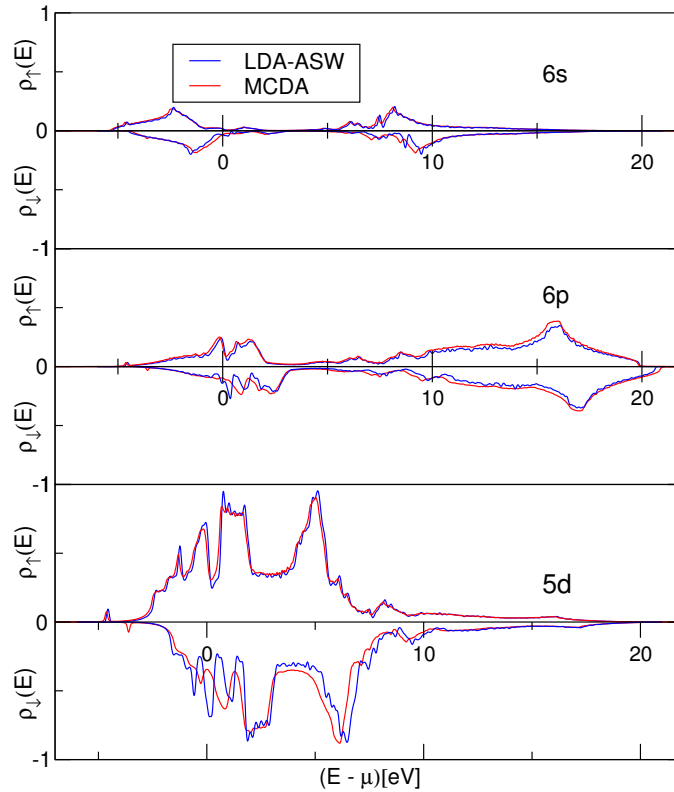


Abbildung 5.2: Partielle Zustandsdichte von Gd als Funktion der Energie für $T = 0$ K. Vergleich der LDA-ASW-Rechnung mit der MCDA-Quasiteilchen-Zustandsdichte.

me einer vom Bandindex m und Wellenzahlvektor \mathbf{k} -unabhängigen Austauschkonstante J , die sicherlich zu diesen Abweichungen einen Beitrag liefert.

Die Abweichungen beider Ergebnisse in der \downarrow -Zustandsdichte werden durch Korrelationseffekte hervorgerufen, die wir bereits im Unterabschnitt 4.2.1 in Verbindung mit dem Ein-Band-Kondo-Gitter-Modell diskutiert haben.

Im nächsten Abschnitt wollen wir die magnetischen Eigenschaften und die Temperaturabhängigkeit des elektronischen Spektrums von Gd vorstellen und diskutieren.

5.4 Diskussion der Ergebnisse

Die selbstkonsistente Rechnung liefert für Gd bei tiefen Temperaturen eine stabile ferromagnetische Phase, deren Ursache offensichtlich in der *modifizierten* RKKY-Wechselwirkung zu finden ist. Die berechnete Magnetisierung $\langle S^z \rangle$ nimmt monoton mit der Temperatur ab und verschwindet bei der Curie-Temperatur

$T_C = 294$ K, die mit dem experimentellen Wert $T_C^{\text{Exp}} = 293$ K erstaunlich gut übereinstimmt. Zur Bestimmung der Curie-Temperatur haben wir Gleichung (4.107) verwendet, wobei wir für die effektiven Austauschintegrale Gleichung (5.37) eingesetzt haben.

Das berechnete magnetische Moment $\mu = 7.71 \mu_B$ zeigt bei $T = 0$ K eine geringe Abweichung vom experimentellen Wert $\mu^{\text{Exp}} = 7.63 \mu_B$. Die erzielte Übereinstimmung mit dem Experiment ist sehr gut, wenn wir zum Vergleich den LDA+U-Wert $\mu = 7.82 \mu_B$ [68] heranziehen.

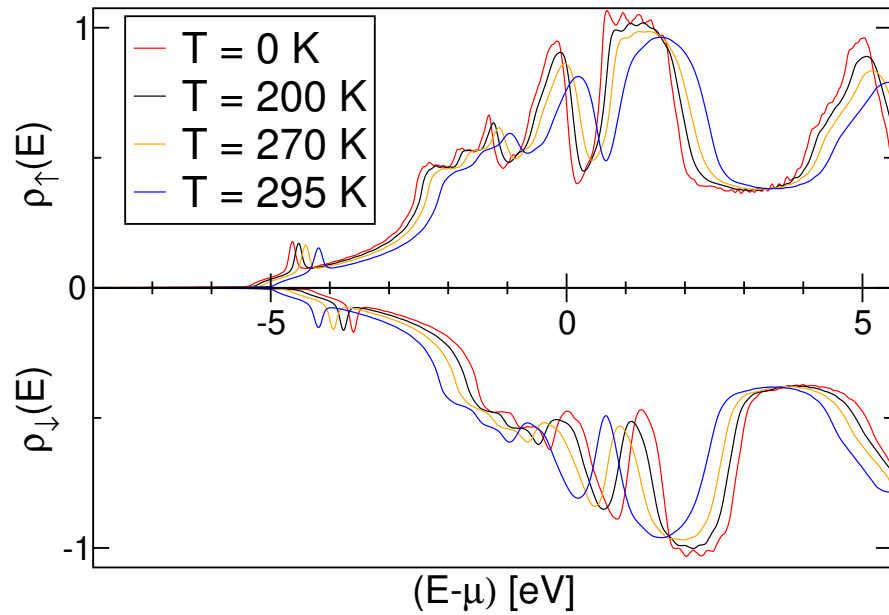


Abbildung 5.3: Quasiteilchen-Zustandsdichte in Abhängigkeit von der Energie ($E - \mu$) (μ : chemisches Potential) für verschiedene Temperaturen. Die Gesamtzustandsdichte enthält die 5d, 6s und 6p Beiträge [9].

Die vom System der lokalisierten Spins induzierte Spinpolarisation der (5d-6s)-Bänder führt zu einer ausgeprägten Temperaturabhängigkeit der Quasiteilchen-Zustandsdichte, die in Abbildung 5.3 zu sehen ist. Die in Abbildung 5.3 dargestellte Gesamtzustandsdichte enthält nicht nur die Beiträge der (5d-6s)-Orbitale d_{xy} , d_{yz} , d_{xz} , $d_{x^2-y^2}$, $d_{3z^2-r^2}$ und 6s, sondern auch die der drei 6p-Orbitale $6p_x$, $6p_y$ und $6p_z$.

Die induzierte $T = 0$ -Aufspaltung der (5d-6s)-Bänder ist letztlich die Ursache für die Abweichung des gesamten magnetischen Moments vom theoretischen Wert von $7 \mu_B$. Mit zunehmender Temperatur nimmt die induzierte Austauschspaltung ab und verschwindet an der Curie-Temperatur. Das Verschwinden der Austauschspaltung kommt nicht nur durch eine starre Verschiebung der Zustandsdichte (Stoner-Verhalten) [110, 111, 112] zustande, sondern es sind durch-

aus Deformationen und Umverteilung von Spektralgewicht in der Quasiteilchen-Zustandsdichte zu beobachten, die durch nichtlineare Effekte wie zum Beispiel die Emission (Absorption) von Magnonen und die Bildung des magnetischen Polarons hervorgerufen werden.

Die selbstkonsistent berechnete Magnetisierung $\langle S^z \rangle$ [9] des lokalisierten Spinsystems in Abbildung 5.4 zeigt eine Temperaturabhängigkeit, die der eines Heisenberg-Ferromagneten sehr ähnelt. Bei genauerem Betrachten können wir

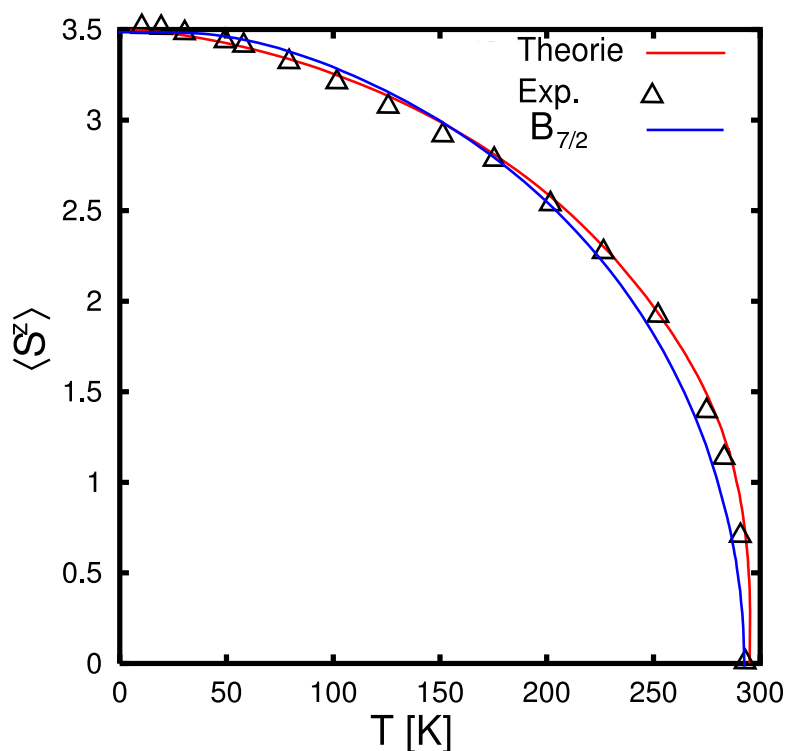


Abbildung 5.4: Magnetisierung $\langle S^z \rangle$ als Funktion der Temperatur für das ferromagnetische Gadolinium. Die Meßresultate sind [10] entnommen. $B_{7/2}$ ist die Brillouin-Funktion.

dennoch wesentliche Unterschiede feststellen. Für tiefere Temperaturen fällt die im Rahmen unserer Theorie berechnete Magnetisierung etwas kleiner als das Ergebnis der Brillouin-Funktion $B_{7/2}(T)$ aus. Dies kann auf eine Entmagnetisierung des lokalisierten Spinsystems durch Magnonenemission zurückgeführt werden. Tatsächlich wurden Abweichungen vom $T^{\frac{3}{2}}$ -Gesetz in [10] experimentell beobachtet.

Im gesamten Temperaturbereich erzielen wir mit der berechneten Magnetisierung eine sehr gute Übereinstimmung mit experimentellen Meßresultaten [10].

Die Austauschspaltung am Γ -Punkt (Δ_2 -Band, Abbildung 5.1) ist in den letzten Jahren Gegenstand kontroverser Diskussionen [113, 11, 112] gewesen. Ihr

Verhalten in der Nähe der Curie-Temperatur hat zur Einführung zweier qualitativ unterschiedlicher Szenarien geführt: Im *Stoner*-Verhalten verschwindet die spinabhängige Austauschspaltung bei der Curie-Temperatur aufgrund einer starren Verschiebung beider Spinanteile. Dagegen wird die Depolarisation beim *Spin-Mixing*-Verhalten durch eine Umverteilung von Spektralgewicht verursacht. In [59] wurde gezeigt, daß das magnetische Verhalten des Gadolinium-Spektrums an verschiedenen Stellen der Brillouin-Zone und in Abhängigkeit von der effektiven Kopplung J/W unterschiedlich sein kann. Für schwache Kopplung ($J/W = 0.08$) wurde das *Stoner*-Verhalten beobachtet, wobei das entsprechende Spektrum unterhalb der Fermi-Energie lag. Für die Kopplung $J/W = 0.22$ und unterhalb der Fermi-Energie verhielt sich die Quasiteilchen-Zustandsdichte wie im *Spin-Mixing*-Szenarium.

Zur Untersuchung der Austauschspaltung des Δ_2 -Bandes in Abhängigkeit von der Temperatur haben wir in Abbildung 5.5 die Spektraldichte am Γ -Punkt dargestellt. Für Temperaturen unterhalb $T = 200$ K ist das *Stoner*-Verhalten deutlich zu

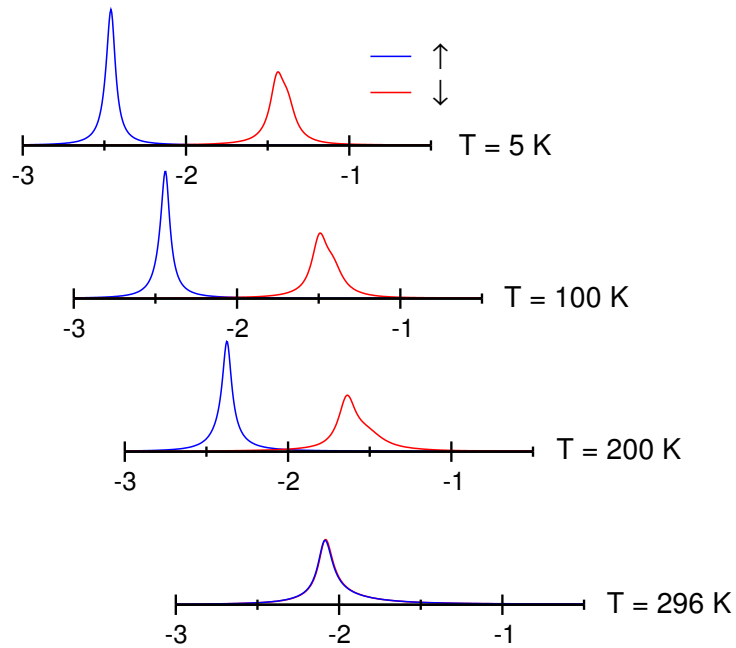


Abbildung 5.5: Spinabhängige Spektraldichte in Abhängigkeit von der Energie am Γ -Punkt (Δ_2 -Band) für verschiedene Temperaturen.

erkennen. Die \downarrow -Spektraldichte wird im gesamten Temperaturbereich leicht deformiert. Dies deutet daraufhin, daß das umverteilte Spektralgewicht sehr gering ist. Experimentelle Untersuchungen mit der Photoemissionsspektroskopie [114, 110, 112] können als eine Kombination aus *Stoner*- und *Spin-Mixing*-Verhalten gedeutet werden. In [112] wurde die Verbreiterung der spinabhängigen Spektraldichte

mit zunehmender Temperatur als Anzeichen für das *Spin-Mixing*-Verhalten angesehen und daher das *Stoner*-Verhalten ausgeschlossen. Dennoch bevorzugen die Autoren in [112] eine Kombination aus dem *Spin-Mixing*-Verhalten und dem *Stoner*-Verhalten, um ihre Photoemissionsdaten zu erklären. Theoretische Abschätzungen [115] der Austauschspaltung oberhalb der Curie-Temperatur liegen etwa bei 0.1 eV. Dieser Wert ist mit Hilfe der Photoemissionsspektroskopie aufgrund der geringeren Auflösung [112, 116] praktisch nicht meßbar.

In Abbildung 5.6 [9] haben wir die berechnete Spektraldichte von Gadolinium am Γ -Punkt für verschiedene Temperaturen dargestellt. Eine Verbreiterung der Spek-

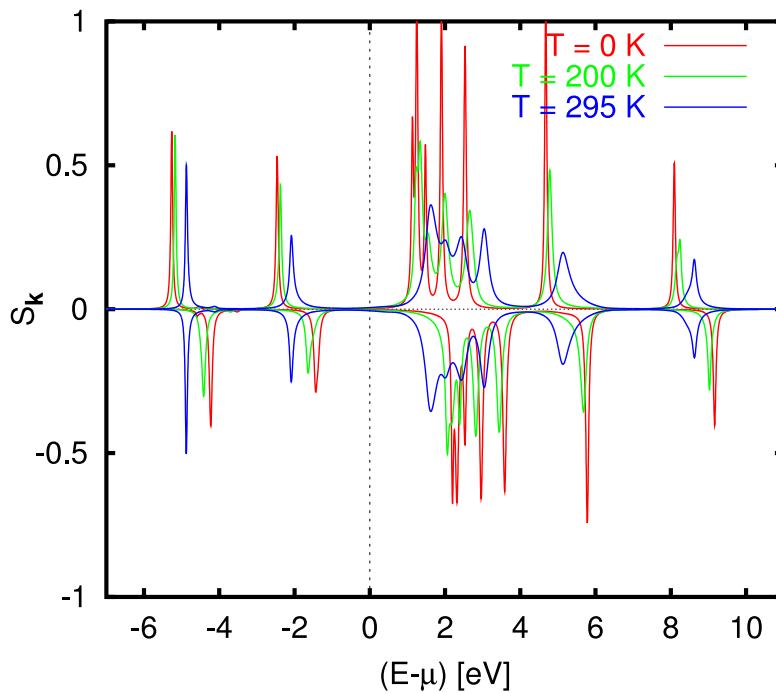


Abbildung 5.6: Spinaufgelöste Spektraldichte von Gd am Γ -Punkt als Funktion der Energie $(E - \mu)$ für verschiedene Temperaturen. $\sigma = \uparrow (\downarrow)$: obere (untere) Hälfte des Bildes.

traldichte ist mit zunehmender Temperatur zu beobachten, wobei aber oberhalb der Fermi-Energie dieser Effekt ausgeprägter ist.

Ein Vergleich mit den Photoemissionsdaten aus [11] ist in der Abbildung 5.7 dargestellt. Die Austauschspaltung haben wir aus der Differenz der Schwerpunkte des Δ_2 -Bandes für die zwei Spinprojektionen bestimmt. Die berechnete Austauschspaltung liegt für tiefe Temperaturen oberhalb der Meßresultate aus [11]. Die relative große Abweichung der berechneten Werte können wir auf die spezielle Mittelungsprozedur zur Bestimmung der Austauschkonstanten J zurückführen. Die Bestimmung der Austauschspaltung unter Verwendung der Aufspaltung des Δ_2 -Bandes würde eine perfekte Übereinstimmung der theoretischen und ex-

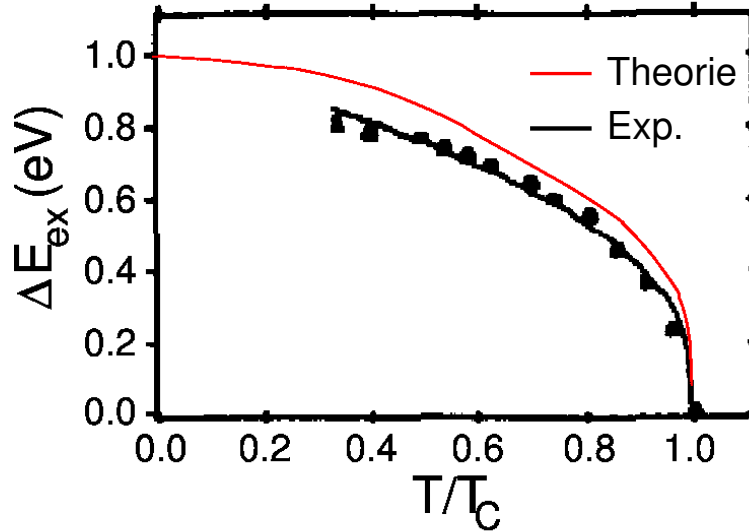


Abbildung 5.7: Vergleich der berechneten Austauschspaltung mit Photoemissionsdaten aus [11].

perimentellen Ergebnisse liefern.

An der Curie-Temperatur verschwindet die Spinaufspaltung und wir können keine induzierte Austauschspaltung oberhalb der Curie-Temperatur feststellen.

Die von [117] zur Verfügung gestellten Daten, lassen bezüglich der Austauschspaltung bei der Curie-Temperatur keinen eindeutigen Schluß zu, da diese bei der Curie-Temperatur einen großen Meßfehler aufweisen.

Korrelationseffekte in der Quasiteilchen-Bandstruktur von Gd lassen sich am besten mit Hilfe der Darstellung in Abbildung 5.8 verdeutlichen. Für $T = 0$ K sind im \uparrow -Spektrum keine Dämpfungseffekte zu erkennen. Im \downarrow -Spektrum dagegen können wir sehen, daß für die Bereiche in der Brillouin-Zone, wo die Bänder flach verlaufen, die Dämpfung am stärksten ist. Dieser Effekt ist für die mittlere Temperatur $T = 150$ K und $\sigma = \uparrow$ besser zu erkennen. In Abbildung 5.6 konnten wir bereits erkennen, daß die Spektraldichte oberhalb der Fermi-Energie stärker verbreitet war.

Bei der Curie-Temperatur gilt wieder die Spinsymmetrie und die Dämpfungseffekte sind im gleichen Umfang für beide Spinrichtungen sichtbar.

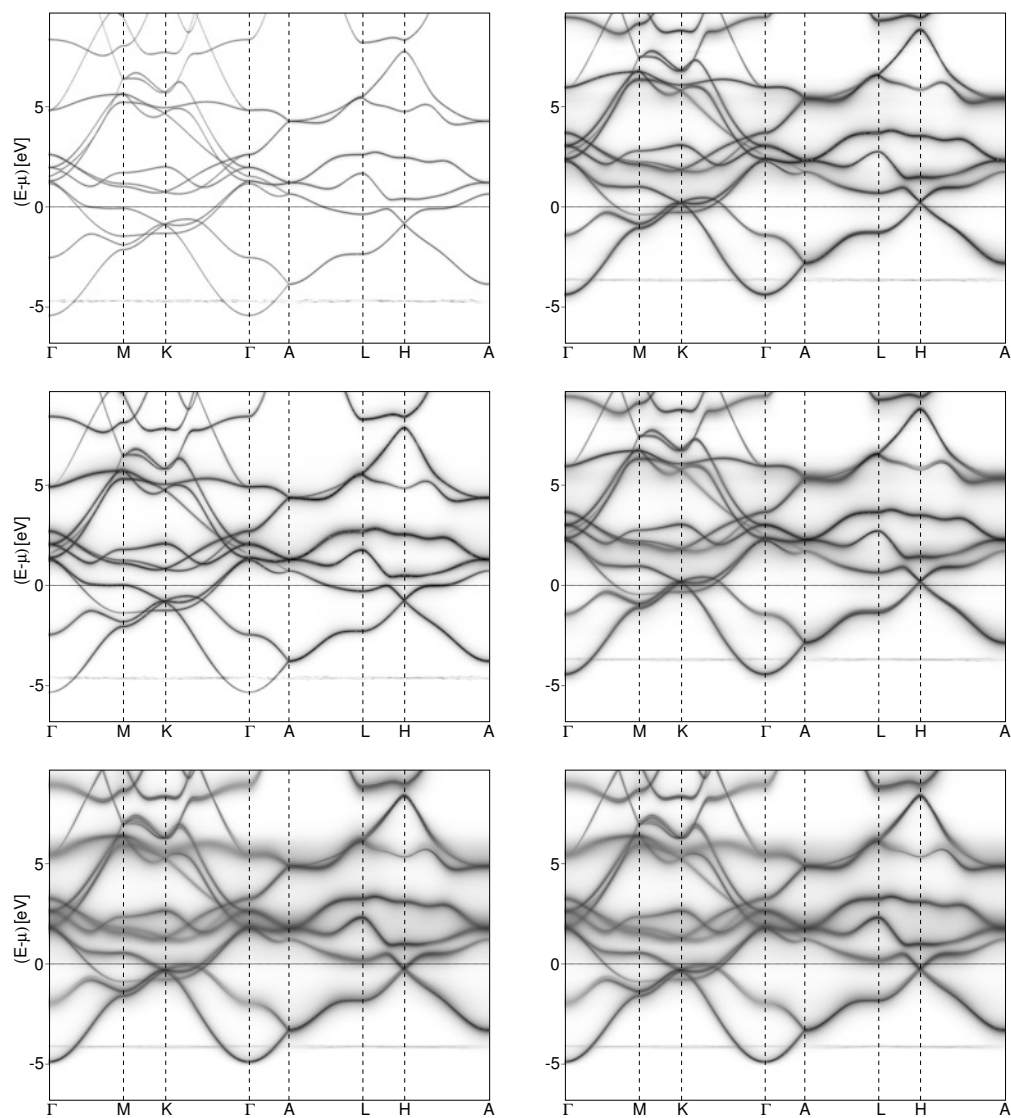


Abbildung 5.8: Spektraldichte (Quasiteilchen-Bandstruktur) von Gd für $T = 0$ K, $T = 150$ K und $T = 295$ K.

Anhang A

Exakte Relationen

Die Bewegungsgleichung (4.6) koppelt die *Spinflipfunktion* für $\sigma = \downarrow$ an vier neue Greensche Funktionen, die entweder verschwinden, oder sich auf bereits bekannte Greensche Funktionen reduzieren lassen.

$$\sum_m (E \delta_{im} - T_{km}) F_{imj\downarrow}(E) = -\frac{J}{2\hbar} \left\{ \langle \langle S_i^+ S_k^z c_{k\uparrow}; c_{j\downarrow}^+ \rangle \rangle_E + \langle \langle S_i^+ S_k^- c_{k\downarrow}; c_{j\downarrow}^+ \rangle \rangle_E \right. \\ \left. - \hbar \langle \langle S_i^+ (n_{i\uparrow} - n_{i\downarrow}) c_{k\uparrow}; c_{j\downarrow}^+ \rangle \rangle_E + 2\hbar \langle \langle S_i^z c_{i\uparrow}^+ c_{i\downarrow} c_{k\uparrow}; c_{j\downarrow}^+ \rangle \rangle_E \right\} \quad (\text{A.1})$$

In der ferromagnetischen Sättigung kann die Wirkungsweise einiger Spinoperatoren auf den in Unterabschnitt 4.2.1 definierten Vakuumzustand $|0\rangle$ exakt angegeben werden:

$$S_i^+ |0\rangle = 0, \quad S_i^z |0\rangle = \hbar S |0\rangle. \quad (\text{A.2})$$

Für das leere Leitungsband ist das Ergebnis der Anwendung des Vernichtungsoperator $c_{i\sigma}$ bzw. des Besetzungszahloperators $n_{i\sigma}$ auf den Vakuumzustand $|0\rangle$ ebenfalls bekannt:

$$c_{i\sigma} |0\rangle = 0, \quad n_{i\sigma} |0\rangle = 0. \quad (\text{A.3})$$

Die zweite Greensche Funktion auf der rechten Seite von (A.1) formen wir mit Hilfe der Kommutatorrelation für die Leiteroperatoren $[S_i^+, S_k^-]_- = 2\hbar \delta_{ik} S_k^z$ so um, daß wir die Vorschriften (A.2) und (A.3) anwenden können:

$$\langle \langle S_i^+ S_k^- c_{k\downarrow}; c_{j\downarrow}^+ \rangle \rangle_E = \langle \langle S_k^- S_i^+ c_{k\downarrow}; c_{j\downarrow}^+ \rangle \rangle_E + 2\hbar \delta_{ik} \langle \langle S_i^z c_{k\downarrow}; c_{j\downarrow}^+ \rangle \rangle_E. \quad (\text{A.4})$$

Die Auswertung des ersten Summanden auf der rechten Seite der Gleichung (A.4) gelingt, wenn wir in die Zeitdarstellung wechseln:

$$\langle \langle (S_k^- S_i^+ c_{k\downarrow})(t); c_{j\downarrow}^+(0) \rangle \rangle = -i\Theta(t) \left\{ \langle \langle (S_k^- S_i^+ c_{k\downarrow})(t) c_{j\downarrow}^+(0) \rangle \rangle \right. \\ \left. + \langle c_{j\downarrow}^+(0) (S_k^- S_i^+ c_{k\downarrow})(t) \rangle \right\}. \quad (\text{A.5})$$

Die Greensche Funktion $\langle\langle(S_k^- S_i^+ c_{k\downarrow})(t); c_{j\downarrow}^+(0)\rangle\rangle$ verschwindet, da beide zeitabhängigen Korrelationsfunktionen, wegen $\langle 0|S_k^- = 0$ und $S_i^+|0\rangle = 0$, keinen Beitrag liefern. Damit ergibt sich insgesamt für die Greensche Funktion in (A.4) folgendes Resultat:

$$\langle\langle S_i^+ S_k^- c_{k\downarrow}; c_{j\downarrow}^+ \rangle\rangle_E = 2\hbar S \delta_{ik} \langle\langle c_{k\downarrow}; c_{j\downarrow}^+ \rangle\rangle_E. \quad (\text{A.6})$$

Durch analoge Betrachtungen können wir auch die dritte und vierte Greensche Funktionen in (A.1) auswerten. Es stellt sich heraus, daß beide Greenschen Funktionen identisch verschwinden:

$$\langle\langle S_i^+ (n_{i\uparrow} - n_{i\downarrow}) c_{k\uparrow}; c_{j\downarrow}^+ \rangle\rangle_E = 0, \quad (\text{A.7})$$

$$\langle\langle S_i^z c_{i\uparrow}^+ c_{i\downarrow} c_{k\uparrow}; c_{j\downarrow}^+ \rangle\rangle_E = 0. \quad (\text{A.8})$$

Zur Untersuchung der ersten Greenschen Funktion auf der rechten Seite von (A.1) betrachten wir analog zu (A.4) ihre Zeitdarstellung:

$$\begin{aligned} \langle\langle (S_k^+ S_i^z c_{k\uparrow})(t); c_{j\downarrow}^+(0) \rangle\rangle &= -i\Theta(t) \langle\langle (S_k^+ S_i^z c_{k\uparrow})(t) c_{j\downarrow}^+(0) \rangle\rangle \\ &\quad - i\Theta(t) \langle c_{j\downarrow}^+(0) (S_k^+ S_i^z c_{k\uparrow})(t) \rangle. \end{aligned} \quad (\text{A.9})$$

Die erste zeitabhängige Korrelationsfunktion auf der rechten Seite der Gleichung (A.9) läßt sich wie folgt umformen:

$$\langle\langle (S_k^+ S_i^z c_{k\uparrow})(t) c_{j\downarrow}^+(0) \rangle\rangle = -\hbar \delta_{ik} \langle\langle (S_i^+ c_{k\uparrow})(t) c_{j\downarrow}^+(0) \rangle\rangle + \hbar S \langle\langle (S_k^+ c_{k\uparrow})(t) c_{j\downarrow}^+(0) \rangle\rangle. \quad (\text{A.10})$$

Mit diesem Ergebnis und der zweiten zeitabhängigen Korrelationsfunktion auf der rechten Seite von (A.9) können wir insgesamt für die gesuchte Greensche Funktion in (A.9) schreiben:

$$\langle\langle S_i^+ S_k^z c_{k\uparrow}; c_{j\downarrow}^+ \rangle\rangle_E = \hbar (S - \delta_{ik}) F_{ikj\downarrow}(E). \quad (\text{A.11})$$

Mit diesen exakten Relationen formen wir die Bewegungsgleichung der *Spinflip-funktion* (A.1) in die entsprechende einfachere Gleichung (4.33) um.

Anhang B

Fourier-Transformation

$$\mathcal{O}'_i = \frac{1}{\sqrt{N}} \sum_{\mathbf{k}} e^{i\mathbf{k} \cdot \mathbf{R}_i} \mathcal{O}'_{\mathbf{k}} \quad (\text{B.1})$$

$$\mathcal{O}_{ij} = \frac{1}{N} \sum_{\mathbf{k}} e^{i\mathbf{k} \cdot (\mathbf{R}_i - \mathbf{R}_j)} \mathcal{O}_{\mathbf{k}} \quad (\text{B.2})$$

$$\mathcal{O}_{ikj} = \frac{1}{N^{3/2}} \sum_{\mathbf{kq}} e^{i(\mathbf{q} \cdot \mathbf{R}_i + (\mathbf{k} - \mathbf{q}) \cdot \mathbf{R}_k - \mathbf{k} \cdot \mathbf{R}_j)} \mathcal{O}_{\mathbf{kq}} \quad (\text{B.3})$$

$$\begin{aligned} & \frac{1}{N^{3/2}} \sum_{ilj} e^{-i(\mathbf{q} \cdot \mathbf{R}_i + (\mathbf{k} - \mathbf{q}) \cdot \mathbf{R}_l - \mathbf{k} \cdot \mathbf{R}_j)} \delta_{il} \mathcal{O}_{ilj} \\ &= \frac{1}{N^{3/2}} \sum_{ilj} e^{-i(\mathbf{q} \cdot \mathbf{R}_i + (\mathbf{k} - \mathbf{q}) \cdot \mathbf{R}_l - \mathbf{k} \cdot \mathbf{R}_j)} \frac{1}{N} \sum_{\mathbf{p}} e^{i\mathbf{p} \cdot (\mathbf{R}_i - \mathbf{R}_l)} \mathcal{O}_{ilj} \\ &= \frac{1}{N} \sum_{\mathbf{p}} \frac{1}{N^{3/2}} \sum_{ilj} e^{-i((\mathbf{q} - \mathbf{p}) \cdot \mathbf{R}_i + (\mathbf{k} - \mathbf{q} + \mathbf{p}) \cdot \mathbf{R}_l - \mathbf{k} \cdot \mathbf{R}_j)} \mathcal{O}_{ilj} \\ &\stackrel{\mathbf{q} - \mathbf{p} \rightarrow \mathbf{q}'}{=} \frac{1}{N} \sum_{\mathbf{q}'} \frac{1}{N^{3/2}} \sum_{ilj} e^{-i(\mathbf{q}' \cdot \mathbf{R}_i + (\mathbf{k} - \mathbf{q}') \cdot \mathbf{R}_l - \mathbf{k} \cdot \mathbf{R}_j)} \mathcal{O}_{ilj} \\ &= \frac{1}{N} \sum_{\mathbf{q}'} \mathcal{O}_{\mathbf{kq}'} \end{aligned} \quad (\text{B.4})$$

$$\begin{aligned}
& \frac{1}{N^{3/2}} \sum_{ilj} e^{-i(\mathbf{q} \cdot \mathbf{R}_i + (\mathbf{k} - \mathbf{q}) \cdot \mathbf{R}_l - \mathbf{k} \cdot \mathbf{R}_j)} \sum_k T_{lk} \mathcal{O}_{ikj} \\
&= \frac{1}{N^{3/2}} \sum_{iljk} e^{-i(\mathbf{q} \cdot \mathbf{R}_i + (\mathbf{k} - \mathbf{q}) \cdot \mathbf{R}_l - \mathbf{k} \cdot \mathbf{R}_j)} \frac{1}{N} \sum_{\mathbf{p}} e^{i\mathbf{p} \cdot (\mathbf{R}_l - \mathbf{R}_k)} \varepsilon(\mathbf{p}) \mathcal{O}_{ikj} \\
&= \frac{1}{N^{3/2}} \sum_{iljk} \frac{1}{N} \sum_{\mathbf{p}} e^{-i(\mathbf{q} \cdot \mathbf{R}_i + (\mathbf{k} - \mathbf{q} - \mathbf{p}) \cdot \mathbf{R}_l - \mathbf{k} \cdot \mathbf{R}_j)} e^{-i\mathbf{p} \cdot \mathbf{R}_k} \varepsilon(\mathbf{p}) \mathcal{O}_{ikj} \\
&= \frac{1}{N^{3/2}} \sum_{ijk} \sum_{\mathbf{p}} \underbrace{\frac{1}{N} \sum_l e^{-i(\mathbf{k} - \mathbf{q} - \mathbf{p}) \cdot \mathbf{R}_l}}_{\delta(\mathbf{k} - \mathbf{q} - \mathbf{p})} e^{-i(\mathbf{q} \cdot \mathbf{R}_i + \mathbf{p} \cdot \mathbf{R}_k - \mathbf{k} \cdot \mathbf{R}_j)} \varepsilon(\mathbf{p}) \mathcal{O}_{ikj} \\
&= \varepsilon(\mathbf{k} - \mathbf{q}) \mathcal{O}_{\mathbf{k}\mathbf{q}}
\end{aligned} \tag{B.5}$$

$$\begin{aligned}
& \frac{1}{N^{3/2}} \sum_{ilj} e^{-i(\mathbf{q} \cdot \mathbf{R}_i + (\mathbf{k} - \mathbf{q}) \cdot \mathbf{R}_l + \mathbf{k} \cdot \mathbf{R}_j)} \delta_{il} \sum_k M_{lk} \mathcal{O}_{ikj} \\
&= \frac{1}{N^{3/2}} \sum_{ij} e^{-i\mathbf{k} \cdot (\mathbf{R}_i - \mathbf{R}_j)} \sum_k M_{ik} \mathcal{O}_{ikj} \\
&= \frac{1}{N^{3/2}} \sum_{ikj} e^{-i\mathbf{k} \cdot (\mathbf{R}_i - \mathbf{R}_j)} \frac{1}{N} \sum_{\mathbf{q}} e^{i\mathbf{q} \cdot (\mathbf{R}_i - \mathbf{R}_k)} M_{\mathbf{q}} \mathcal{O}_{ikj} \\
&= \frac{1}{N} \sum_{\mathbf{q}} M_{\mathbf{q}} \frac{1}{N^{3/2}} \sum_{ikj} e^{-i((\mathbf{k} - \mathbf{q}) \cdot \mathbf{R}_i + \mathbf{q} \cdot \mathbf{R}_k - \mathbf{k} \cdot \mathbf{R}_j)} \mathcal{O}_{ikj} \\
&\stackrel{\mathbf{k} - \mathbf{q} \rightarrow \mathbf{p}}{=} \frac{1}{N} \sum_{\mathbf{p}} M_{\mathbf{k} - \mathbf{p}} \frac{1}{N^{3/2}} \sum_{ikj} e^{-i(\mathbf{p} \cdot \mathbf{R}_i + (\mathbf{k} - \mathbf{p}) \cdot \mathbf{R}_k) - \mathbf{k} \cdot \mathbf{R}_j} \mathcal{O}_{ikj} \\
&= \frac{1}{N} \sum_{\mathbf{p}} M_{\mathbf{k} - \mathbf{p}} \mathcal{O}_{\mathbf{k}\mathbf{p}}
\end{aligned} \tag{B.6}$$

Anhang C

Elektronische Selbstenergie (MCDA)

Zur Herleitung der elektronischen Selbstenergie (4.64) benötigen wir die Bewegungsgleichungen der *Spinflipfunktion* und der *Isingfunktion*. Die Inhomogenität in der Bewegungsgleichung der *Spinflipfunktion* verschwindet:

$$\sum_l ((E + \mu)\delta_{kl} - T_{kl})F_{ilj\sigma}(E) = \langle \langle [S_i^{-\sigma} c_{k-\sigma}, H_{sf}]_-; c_{j\sigma}^+ \rangle \rangle_E. \quad (\text{C.1})$$

Dagegen ist die Inhomogenität in der Bewegungsgleichung der *Isingfunktion* gerade $\hbar \langle S_i^z \rangle$. Durch die Definition einer modifizierten *Isingfunktion* $\bar{\Gamma}_{ikj\sigma}(E)$

$$\begin{aligned} \bar{\Gamma}_{ikj\sigma}(E) &= \langle \langle S_i^z c_{k\sigma}; c_{j\sigma}^+ \rangle \rangle_E - \langle S_i^z \rangle G_{kj\sigma}(E) \\ &\equiv \langle \langle \delta(S_i^z) c_{k\sigma}; c_{j\sigma}^+ \rangle \rangle_E, \end{aligned} \quad (\text{C.2})$$

läßt sich die Inhomogenität aus der Bewegungsgleichung entfernen. Dadurch erhalten wir eine zu (C.1) analoge Bewegungsgleichung für die neue *Isingfunktion*:

$$\sum_l ((E + \mu)\delta_{kl} - T_{kl})\bar{\Gamma}_{ilj\sigma}(E) = \langle \langle [\delta(S_i^z) c_{k\sigma}, H_{sf}]_-; c_{j\sigma}^+ \rangle \rangle_E. \quad (\text{C.3})$$

Wir spalten den Kommutator auf den rechten Seiten von (C.1) und (C.3) in zwei Kommutatoren mit Hilfe der Beziehung $[AB, C]_- = A[B, C]_- + [A, C]_- B$ auf:

$$\begin{aligned} \langle \langle [A_i c_{k-\sigma}, H_{sf}]_-; c_{j\sigma}^+ \rangle \rangle_E &= \langle \langle A_i [c_{k-\sigma}, H_{sf}]_-; c_{j\sigma}^+ \rangle \rangle_E + \\ &+ \langle \langle [A_i, H_{sf}]_- c_{k-\sigma}; c_{j\sigma}^+ \rangle \rangle_E, \end{aligned} \quad (\text{C.4})$$

wobei der Operator A_i für einen der Spinoperatoren $S_i^{-\sigma}$ oder $\delta(S_i^z)$ steht. Weiterhin nehmen wir, wie bereits im Unterabschnitt 4.3.1 erklärt, eine Unterscheidung zwischen diagonalen und nichtdiagonalen Beiträgen vor. Die Entkopplung

der nichtdiagonalen Beiträge ($i \neq k$) resultiert in folgenden Vereinfachungen:

$$\langle\langle S_i^{-\sigma}[c_{k-\sigma}, H_{sf}]_-; c_{j\sigma}^+ \rangle\rangle_E \approx \sum_l M_{kl-\sigma}(E) F_{ilj\sigma}(E), \quad (C.5)$$

$$\langle\langle (\delta S_i^z)[c_{k\sigma}, H_{sf}]_-; c_{j\sigma}^+ \rangle\rangle_E \approx \sum_l M_{kl\sigma}(E) \bar{\Gamma}_{ilj\sigma}(E). \quad (C.6)$$

Die höheren Greenschen Funktion, die durch den Kommutator eines Spinoperators mit der Wechselwirkung H_{sf} entstehen, sollen hier unter Verwendung des im Unterabschnitt 4.3.2 hergeleiteten effektiven Heisenberg-Hamilton-Operators (4.67) ausgewertet werden. Unter Verwendung der Kommutatoren

$$[S_i^{-\sigma}, H_f]_- = 2\hbar z_\sigma \sum_m \hat{f}_{im} (S_m^z S_i^{-\sigma} - S_i^z S_m^{-\sigma}) \quad (C.7)$$

$$[S_i^z, H_f]_- = \hbar \sum_m \hat{f}_{im} (S_i^+ S_m^- - S_i^- S_m^+) \quad (C.8)$$

können wir analog zu (C.5) und (C.6) die höheren Greenschen Funktionen auf bereits bekannte Greensche Funktionen zurückführen:

$$\langle\langle [S_i^{-\sigma}, H_f]_- c_{k-\sigma}; c_{j\sigma}^+ \rangle\rangle_E \approx 2\hbar z_\sigma \langle S_i^z \rangle \sum_l \hat{f}_{il} (F_{lkj\sigma}(E) - F_{ikj\sigma}(E)) \approx 0, \quad (C.9)$$

$$\langle\langle [S_i^z, H_f]_- c_{k\sigma}; c_{j\sigma}^+ \rangle\rangle_E \approx \hbar \sum_l \hat{f}_{il} (\langle S_i^+ S_l^- \rangle - \langle S_i^- S_l^+ \rangle) G_{kj\sigma}(E) \approx 0. \quad (C.10)$$

Bevor wir uns der Entkopplung höherer Greenschen Funktionen für den diagonalen Fall ($i = k$) zuwenden, sollen zunächst einige Abkürzungen eingeführt werden, die die Lesbarkeit verbessern:

$$F_{ij\sigma}^{(1)}(E) = \langle\langle S_i^{-\sigma} S_i^z c_{i-\sigma}; c_{j\sigma}^+ \rangle\rangle_E \quad (C.11)$$

$$F_{ij\sigma}^{(2)}(E) = \langle\langle \delta(S_i^{-\sigma} S_i^{+\sigma}) c_{i\sigma}; c_{j\sigma}^+ \rangle\rangle_E \quad (C.12)$$

$$F_{ij\sigma}^{(3)}(E) = \langle\langle S_i^{-\sigma} n_{i\sigma} c_{i-\sigma}; c_{j\sigma}^+ \rangle\rangle_E \quad (C.13)$$

$$F_{ij\sigma}^{(4)}(E) = \langle\langle S_i^z n_{i-\sigma} c_{i\sigma}; c_{j\sigma}^+ \rangle\rangle_E. \quad (C.14)$$

Damit läßt sich der diagonale Beitrag zum Kommutator auf der rechten Seite von (C.1) durch die oben definierten Greenschen Funktionen wie folgt schreiben:

$$\begin{aligned} \langle\langle S_i^{-\sigma}[c_{i-\sigma}, H_{sf}]_-; c_{j\sigma}^+ \rangle\rangle_E = \\ -\frac{J}{2\hbar} \left\{ \langle S_i^{-\sigma} S_i^{+\sigma} \rangle G_{ij\sigma}(E) - z_\sigma F_{ij\sigma}^{(1)}(E) + F_{ij\sigma}^{(2)}(E) \right\} \end{aligned} \quad (C.15)$$

$$\langle\langle [S_i^{-\sigma}, H_{sf}] - c_{i-\sigma}; c_{j\sigma}^+ \rangle\rangle_E = -\frac{J}{2\hbar} \left\{ \hbar F_{ij\sigma}^{(3)}(E) - 2\hbar z_\sigma F_{ij\sigma}^{(4)}(E) \right\}. \quad (\text{C.16})$$

Für die Bewegungsgleichung der modifizierten *Isingfunktion* (C.3) ergeben sich ebenfalls im diagonalen Fall neben den Greenschen Funktionen G, F und $\bar{\Gamma}$ auch höhere Greensche Funktionen, die wir auf die bekannten Greenschen Funktionen zurückführen werden:

$$\begin{aligned} \langle\langle (\delta S_i^z) [c_{i\sigma}, H_{sf}] -; c_{j\sigma}^+ \rangle\rangle_E = \\ -\frac{J}{2\hbar} \left\{ z_\sigma \langle (\delta S_i^z)^2 \rangle G_{ij\sigma}(E) - (\hbar + z_\sigma \langle S_i^z \rangle) (\bar{\Gamma}_{ij\sigma}(E) + z_\sigma F_{ij\sigma}(E)) \right. \\ \left. + F_{ij\sigma}^{(1)}(E) - z_\sigma F_{ij\sigma}^{(2)}(E) \right\}, \end{aligned} \quad (\text{C.17})$$

$$\langle\langle [(\delta S_i^z), H_{sf}] - c_{i\sigma}; c_{j\sigma}^+ \rangle\rangle_E = -\frac{J}{2\hbar} \hbar z_\sigma F_{ij\sigma}^{(3)}(E). \quad (\text{C.18})$$

Um einen Ansatz zur Entkopplung der höheren Greenschen Funktionen (C.11) bis (C.14) zu konstruieren, sind einige Vorbetrachtungen nötig. Dabei wollen wir exakte Grenzfälle untersuchen und diese dann als Orientierung für einen möglichen Ansatz für die Greenschen Funktionen $F^{(1)}$ bis $F^{(4)}$ heranziehen.

Für $S = \frac{1}{2}$ können wir die Greenschen Funktionen $F^{(1)}$ und $F^{(2)}$ exakt durch die Greenschen Funktionen F und $\bar{\Gamma}$ ausdrücken:

$$F_{ij\sigma}^{(1)}(E) = \frac{\hbar}{2} z_\sigma F_{ij\sigma}(E), \quad (\text{C.19})$$

$$F_{ij\sigma}^{(2)}(E) = -\hbar z_\sigma \bar{\Gamma}_{ij\sigma}(E). \quad (\text{C.20})$$

In der ferromagnetischen Sättigung und für beliebiges S lassen sich $F^{(1)}$ und $F^{(2)}$ ebenfalls durch die Funktionen F und $\bar{\Gamma}$ exakt darstellen:

$$F_{ij\sigma}^{(1)}(E) = \hbar \left(S - \frac{1}{2} + \frac{1}{2} z_\sigma \right) F_{ij\sigma}(E), \quad (\text{C.21})$$

$$F_{ij\sigma}^{(2)}(E) = -\hbar z_\sigma \bar{\Gamma}_{ij\sigma}(E). \quad (\text{C.22})$$

Die höheren Greenschen Funktionen $F^{(3)}$ und $F^{(4)}$ können weder für $S = \frac{1}{2}$ noch in der ferromagnetischen Sättigung durch die *Spinflip*- oder *Isingfunktion* exakt dargestellt werden, wohingegen exakte Beziehungen im Grenzfall des vollen Leitungsbandes ($n = 2$) möglich sind:

$$F_{ij\sigma}^{(3)}(E) = \begin{cases} 0 & : n = 0 \\ F_{ij\sigma}(E) & : n = 2 \end{cases}, \quad (\text{C.23})$$

$$F_{ij\sigma}^{(4)}(E) = \begin{cases} 0 & : n = 0 \\ \bar{\Gamma}_{ij\sigma}(E) + \langle S_i^z \rangle G_{ij\sigma}(E) & : n = 2 \end{cases}. \quad (\text{C.24})$$

Die Berücksichtigung der oben diskutierten Grenzfälle erlaubt uns, folgende Ansätze für die höheren Greenschen Funktionen aufzustellen:

$$F_{ij\sigma}^{(1)}(E) = \alpha_{1\sigma} G_{ij\sigma}(E) + \beta_{1\sigma} F_{ij\sigma}(E) \quad (C.25)$$

$$F_{ij\sigma}^{(2)}(E) = \alpha_{2\sigma} G_{ij\sigma}(E) + \beta_{2\sigma} \bar{\Gamma}_{ij\sigma}(E) \quad (C.26)$$

$$F_{ij\sigma}^{(3)}(E) = \alpha_{3\sigma} G_{ij\sigma}(E) + \beta_{3\sigma} F_{ij\sigma}(E) \quad (C.27)$$

$$F_{ij\sigma}^{(4)}(E) = \alpha_{4\sigma} G_{ij\sigma}(E) + \beta_{4\sigma} \bar{\Gamma}_{ij\sigma}(E). \quad (C.28)$$

Die zunächst unbekannten Koeffizienten $\alpha_{i\sigma}$ und $\beta_{i\sigma}$ bestimmen wir durch Abgleich mit den entsprechenden Spektralmomenten, die zusammen mit den Koeffizienten $\alpha_{i\sigma}$ und $\beta_{i\sigma}$ im Anhang D zu finden sind. Letztlich erhalten wir ein Gleichungssystem zur Bestimmung der *Spinflip*- und *Isingfunktion* als Funktional der Ein-Teilchen-Green-Funktion G . In der Gleichung für die *Spinflipfunktion* ist außerdem die Fourier-transformierte der Magnonenenergie $E_{ij} = 2\hbar \langle S_i^z \rangle (\hat{J}_0 \delta_{ij} - \hat{J}_{ij})$ enthalten:

$$\begin{aligned} \sum_l ((E + \mu) \delta_{kl} - T_{kl} - M_{kl-\sigma}(E)) F_{ilj\sigma}(E) + \sum_l z_\sigma E_{il} F_{lkj\sigma}(E) = \\ \delta_{ik} \left\{ -\frac{J}{2\hbar} (A_\sigma G_{ij\sigma}(E) + B_\sigma \bar{\Gamma}_{ij\sigma}(E) + C_\sigma F_{ij\sigma}(E)) \right. \\ \left. - \sum_l M_{kl-\sigma}(E) F_{ilj\sigma}(E) + \sum_l z_\sigma E_{il} F_{lij\sigma}(E) \right\}, \quad (C.29) \end{aligned}$$

wobei wir hier für A_σ , B_σ und C_σ die unten notierten Abkürzungen verwendet haben:

$$A_\sigma = \langle S_i^{-\sigma} S_i^{+\sigma} \rangle + \hbar \alpha_{3\sigma} - \hbar z_\sigma \alpha_{4\sigma}, \quad (C.30)$$

$$B_\sigma = \beta_{2\sigma} - 2\hbar z_\sigma \beta_{4\sigma}, \quad (C.31)$$

$$C_\sigma = -z_\sigma \beta_{1\sigma} + \hbar \beta_{3\sigma}. \quad (C.32)$$

Die modifizierte *Isingfunktion* $\bar{\Gamma}$ erfüllt eine ähnliche Bewegungsgleichung wie die *Spinflipfunktion*:

$$\begin{aligned} \sum_l ((E + \mu) \delta_{kl} - T_{kl} - M_{kl\sigma}(E)) \bar{\Gamma}_{ilj\sigma}(E) = \\ \delta_{ik} \left\{ -\frac{J}{2\hbar} (a_\sigma G_{ij\sigma}(E) + b_\sigma \bar{\Gamma}_{ij\sigma}(E) + c_\sigma F_{ij\sigma}(E)) \right. \\ \left. - \sum_l M_{kl\sigma}(E) \bar{\Gamma}_{ilj\sigma}(E) \right\}. \quad (C.33) \end{aligned}$$

In diesem Fall sind die Koeffizienten a_σ , b_σ und c_σ durch folgende Beziehungen festgelegt:

$$a_\sigma = z_\sigma \langle (\delta S_i^z)^2 \rangle + \hbar z_\sigma \alpha_{3\sigma}, \quad (\text{C.34})$$

$$b_\sigma = -z_\sigma \beta_{2\sigma} - (\hbar + z_\sigma \langle S_i^z \rangle), \quad (\text{C.35})$$

$$c_\sigma = \beta_{1\sigma} + \hbar z_\sigma \beta_{3\sigma} - z_\sigma (\hbar + z_\sigma \langle S_i^z \rangle). \quad (\text{C.36})$$

Eine Auflösung nach der *Spinflip*- bzw. *Isingfunktion* läßt sich mit Hilfe der zu (C.33) und (C.29) analogen, Fourier-transformierten Gleichungen leichter durchführen.

$$\begin{aligned} & \left(E - \varepsilon(\mathbf{k} - \mathbf{q}) + z_\sigma E(\mathbf{q}) - M_{\mathbf{k}-\mathbf{q}-\sigma}(E) \right) F_{\mathbf{k}\mathbf{q}\sigma}(E) = \\ & - \frac{J}{2\hbar} \left(A_\sigma \frac{1}{\sqrt{N}} G_{\mathbf{k}\sigma}(E) + B_\sigma \frac{1}{N} \sum_{\mathbf{q}} \bar{\Gamma}_{\mathbf{k}\mathbf{q}\sigma}(E) + C_\sigma \frac{1}{N} \sum_{\mathbf{q}} F_{\mathbf{k}\mathbf{q}\sigma}(E) \right) \\ & + \frac{1}{N} \sum_{\mathbf{q}} (z_\sigma E(\mathbf{q}) - M_{\mathbf{k}-\mathbf{q}-\sigma}(E)) F_{\mathbf{k}\mathbf{q}\sigma}(E) \end{aligned} \quad (\text{C.37})$$

$$\begin{aligned} & \left(E - \varepsilon(\mathbf{k} - \mathbf{q}) - M_{\mathbf{k}-\mathbf{q}\sigma}(E) \right) \bar{\Gamma}_{\mathbf{k}\mathbf{q}\sigma}(E) = \\ & - \frac{J}{2\hbar} \left(a_\sigma \frac{1}{\sqrt{N}} G_{\mathbf{k}\sigma}(E) + b_\sigma \frac{1}{N} \sum_{\mathbf{q}} \bar{\Gamma}_{\mathbf{k}\mathbf{q}\sigma}(E) + c_\sigma \frac{1}{N} \sum_{\mathbf{q}} F_{\mathbf{k}\mathbf{q}\sigma}(E) \right) \\ & - \frac{1}{N} \sum_{\mathbf{q}} M_{\mathbf{k}-\mathbf{q}\sigma}(E) \bar{\Gamma}_{\mathbf{k}\mathbf{q}\sigma}(E) \end{aligned} \quad (\text{C.38})$$

Aus den zwei Gleichungen (C.37) und (C.38) können wir die *Isingfunktion* und die *Spinflipfunktion* bestimmen. Es ist jedoch zunächst sinnvoll, einige Abkürzungen einzuführen:

$$P_{\mathbf{k}\sigma}(E) = \frac{1}{N} \sum_{\mathbf{q}} \frac{1}{E - \varepsilon(\mathbf{k} - \mathbf{q}) + z_\sigma E(\mathbf{q}) - M_{\mathbf{k}-\mathbf{q}-\sigma}(E)}. \quad (\text{C.39})$$

$$G_{0\sigma}(E) = \frac{1}{N} \sum_{\mathbf{q}} \frac{1}{E - \varepsilon(\mathbf{k} - \mathbf{q}) - M_{\mathbf{k}-\mathbf{q}\sigma}(E)} \quad (\text{C.40})$$

$$T_{0\sigma}(E) = \frac{1}{N} \sum_{\mathbf{q}} \frac{\frac{Jb_\sigma}{2\hbar} + M_{\mathbf{k}-\mathbf{q}\sigma}(E)}{E - \varepsilon(\mathbf{k} - \mathbf{q}) - M_{\mathbf{k}-\mathbf{q}\sigma}(E)} \quad (\text{C.41})$$

$$Q_{\mathbf{k}\sigma} = \frac{1}{N} \sum_{\mathbf{q}} \frac{\frac{Jc_\sigma}{2\hbar} - z_\sigma E(\mathbf{q}) + M_{\mathbf{k}-\mathbf{q}-\sigma}(E)}{E - \varepsilon(\mathbf{k} - \mathbf{q}) + z_\sigma E(\mathbf{q}) - M_{\mathbf{k}-\mathbf{q}-\sigma}(E)} \quad (\text{C.42})$$

$$Z_{\mathbf{k}\sigma}(E) = (1 + T_{0\sigma}(E))(1 + Q_{\mathbf{k}\sigma}(E)) - \frac{J^2}{4\hbar^2} B_{\sigma} c_{\sigma} G_{0\sigma}(E) P_{\mathbf{k}\sigma}(E) \quad (\text{C.43})$$

Mit den oben definierten Abkürzungen und einigen elementaren Umformungen erhalten wir die Summe aus der *Spinflipfunktion* und der modifizierten *Isingfunktion*.

$$\begin{aligned} -\frac{J}{2\hbar} \frac{1}{\sqrt{N}} \sum_{\mathbf{q}} (z_{\sigma} \bar{\Gamma}_{\mathbf{k}\mathbf{q}\sigma}(E) + F_{\mathbf{k}\mathbf{q}\sigma}(E)) = \\ \frac{J^2}{4\hbar^2 Z_{\mathbf{k}\sigma}(E)} \left\{ \left(z_{\sigma} a_{\sigma} (1 + Q_{\mathbf{k}\sigma}(E)) - \frac{J z_{\sigma} A_{\sigma} c_{\sigma}}{2\hbar} G_{0\sigma}(E) \right) P_{\mathbf{k}\sigma}(E) G_{\mathbf{k}\sigma}(E) \right. \\ \left. + \left(A_{\sigma} (1 + T_{0\sigma}(E)) - \frac{J B_{\sigma} a_{\sigma}}{2\hbar} P_{\mathbf{k}\sigma}(E) \right) P_{\mathbf{k}\sigma}(E) G_{\mathbf{k}\sigma}(E) \right\} \quad (\text{C.44}) \end{aligned}$$

Da der in J lineare Beitrag zur Selbstenergie $M_{\mathbf{k}\sigma}(E)$ bereits durch die Definition der modifizierten *Isingfunktion* berücksichtigt wurde, enthält (C.44) nur noch den Beitrag $D_{\mathbf{k}\sigma}(E)$ zur Selbstenergie (4.64):

$$\begin{aligned} D_{\mathbf{k}\sigma}(E) = \frac{1}{Z_{\mathbf{k}\sigma}(E)} \left\{ \left(z_{\sigma} a_{\sigma} (1 + Q_{\mathbf{k}\sigma}(E)) - \frac{J z_{\sigma} A_{\sigma} c_{\sigma}}{2\hbar} G_{0\sigma}(E) \right) P_{\mathbf{k}\sigma}(E) \right. \\ \left. + \left(A_{\sigma} (1 + T_{0\sigma}(E)) - \frac{J B_{\sigma} a_{\sigma}}{2\hbar} P_{\mathbf{k}\sigma}(E) \right) P_{\mathbf{k}\sigma}(E) \right\}. \quad (\text{C.45}) \end{aligned}$$

Im Grenzfall $n = 0$ und $\langle S^z \rangle = \hbar S$ nehmen die Koeffizienten in (C.45) die folgende einfache Gestalt an:

$$a_{\sigma} = 0; \quad b_{\sigma} = -z_{\sigma} \hbar; \quad c_{\sigma} = -\frac{1}{2} \hbar (1 + z_{\sigma}) \quad (\text{C.46})$$

$$A_{\sigma} = 2\hbar^2 S \delta_{\sigma\downarrow}; \quad B_{\sigma} = -z_{\sigma} \hbar; \quad C_{\sigma} = -z_{\sigma} \hbar \left(S - \frac{1}{2} + \frac{1}{2} z_{\sigma} \right). \quad (\text{C.47})$$

Für $\sigma = \uparrow$ verschwindet $D_{\mathbf{k}\uparrow}$ wegen $a_{\uparrow} = 0$ und $A_{\uparrow} = 0$. Die Selbstenergie für die \uparrow -Elektronen ist demzufolge $M_{\mathbf{k}\uparrow} = -\frac{1}{2} JS$ in Übereinstimmung mit der Fouriertransformierten der exakten Gleichung (4.30). Mit diesem Ergebnis und den entsprechenden Koeffizienten für $\sigma = \downarrow$ läßt sich $D_{\mathbf{k}\downarrow}(E)$ soweit vereinfachen, daß wir anstelle von (C.45) für $\sigma = \downarrow$ den einfacheren Ausdruck

$$D_{\mathbf{k}\downarrow}(E) = \frac{A_{\downarrow}}{1 + Q_{\mathbf{k}\downarrow}(E)} P_{\mathbf{k}\downarrow}(E) \quad (\text{C.48})$$

erhalten. Unter der Annahme $E(\mathbf{q}) = 0$ lassen sich $Q_{\mathbf{k}\downarrow}(E)$ und $P_{\mathbf{k}\downarrow}(E)$ mit Hilfe der Greenschen Funktion $G_0(E)$ wie folgt ausdrücken:

$$Q_{\mathbf{k}\downarrow}(E) = -\frac{1}{2\hbar} J G_0(E + \frac{1}{2} JS), \quad (\text{C.49})$$

$$P_{\mathbf{k}\downarrow}(E) = \frac{1}{\hbar} G_0(E + \frac{1}{2} JS). \quad (\text{C.50})$$

Die Selbstenergie $M_{\mathbf{k}\downarrow}(E)$ lautet dann mit

$$D_{\mathbf{k}\downarrow}(E) = \frac{2\hbar S G_0(E + \frac{1}{2}JS)}{1 - \frac{1}{2\hbar} J G_0(E + \frac{1}{2}JS)} \quad (\text{C.51})$$

wie folgt:

$$M_{\mathbf{k}\downarrow}(E) = \frac{1}{2}JS + \frac{J^2}{4\hbar^2} D_{\mathbf{k}\downarrow}(E). \quad (\text{C.52})$$

Gleichung (C.52) ist mit dem exakten Ergebnis aus Gleichung (4.39) für den *ferromagnetisch gesättigten Halbleiter* identisch, womit wir gezeigt haben, daß die MCDA diesen Grenzfall reproduziert. Der Grenzfall des atomaren Limes für $n = 0$ wird ebenfalls reproduziert, da dieser bereits in dem Grenzfall des *ferromagnetisch gesättigten Halbleiters* enthalten ist.

Anhang D

Spektralmomente

Die ersten und zweiten Spektralmomente der Greenschen Funktionen G , $\bar{\Gamma}$, F , $F^{(1)}$, $F^{(2)}$, $F^{(3)}$ und $F^{(4)}$ lauten.

$$M_{ij\sigma}^{(0)}(G) = \delta_{ij} \quad (\text{D.1})$$

$$M_{ij\sigma}^{(1)}(G) = T_{ij} - \frac{1}{2\hbar} J z_{\sigma} \langle S_i^z \rangle \delta_{ij} \quad (\text{D.2})$$

$$M_{ij\sigma}^{(0)}(F) = 0 \quad (\text{D.3})$$

$$M_{ij\sigma}^{(1)}(F) = -\frac{J}{2\hbar} (\langle S_i^{-\sigma} S_i^{\sigma} \rangle - \hbar \gamma_{\sigma} + 2\hbar z_{\sigma} \Delta_{-\sigma}) \delta_{ij} \quad (\text{D.4})$$

$$M_{ij\sigma}^{(0)}(\bar{\Gamma}) = 0 \quad (\text{D.5})$$

$$M_{ij\sigma}^{(1)}(\bar{\Gamma}) = -\frac{J z_{\sigma}}{2\hbar} (\langle (\delta S_i^z)^2 \rangle - \hbar \gamma_{\sigma}) \delta_{ij} \quad (\text{D.6})$$

$$M_{ij\sigma}^{(0)}(F^{(1)}) = 0 \quad (\text{D.7})$$

$$M_{ij\sigma}^{(1)}(F^{(1)}) = -\frac{J}{2\hbar} (3\hbar z_{\sigma} \langle S_i^{\sigma} S_i^{-\sigma} \rangle - 4\hbar^2 \langle S_i^z \rangle + \langle S_i^{\sigma} S_i^{-\sigma} S_i^z \rangle \quad (\text{D.8})$$

$$\begin{aligned} & -2\hbar^3 z_{\sigma} S(S+1)(1 - \langle n_{i-\sigma} \rangle) + 4\hbar^2 \Delta_{i-\sigma} \\ & -3\hbar z_{\sigma} \mu_{-\sigma} - \hbar \eta_{\sigma}) \delta_{ij} \end{aligned}$$

$$(\text{D.9})$$

$$M_{ij\sigma}^{(0)}(F^{(2)}) = 0 \quad (D.10)$$

$$M_{ij\sigma}^{(1)}(F^{(2)}) = -\frac{Jz_\sigma}{2\hbar} (\langle S_i^{-\sigma} S_i^\sigma S_i^z \rangle - \langle S_i^{-\sigma} S_i^\sigma \rangle \langle S_i^z \rangle + 2\hbar\eta_\sigma) \delta_{ij} \quad (D.11)$$

$$M_{ij\sigma}^{(0)}(F^{(3)}) = -\gamma_\sigma \delta_{ij} \quad (D.12)$$

$$M_{ij\sigma}^{(1)}(F^{(3)}) = -T_{ij}\gamma_\sigma - \frac{J}{2\hbar} (2\hbar z_\sigma \vartheta_\sigma + \mu_\sigma - z_\sigma \eta_\sigma) \delta_{ij} \quad (D.13)$$

$$M_{ij\sigma}^{(0)}(F^{(4)}) = \Delta_{-\sigma} \delta_{ij} \quad (D.14)$$

$$M_{ij\sigma}^{(1)}(F^{(4)}) = T_{ij}\Delta_{-\sigma} - \frac{J}{2\hbar} (\hbar^2 z_\sigma S(S+1) \langle n_{i-\sigma} \rangle - z_\sigma \mu_{-\sigma} + \hbar\Delta_{-\sigma} - z_\sigma \gamma_{-\sigma} - \eta_{-\sigma}) \delta_{ij} \quad (D.15)$$

Die Korrelationsfunktionen ϑ_σ , η_σ und μ_σ erhalten wir aus den Ansätzen (C.25) bis (C.28) mit Hilfe des Spektraltheorems (3.18) wie folgt:

$$\vartheta_\sigma = \langle S_i^z n_{i\sigma} n_{i-\sigma} \rangle = (\alpha_{4\sigma} - \beta_{4\sigma}) \langle n_\sigma \rangle + \beta_{4\sigma} \Delta_\sigma, \quad (D.16)$$

$$\eta_\sigma = \langle S_i^{-\sigma} S_i^z c_{i\sigma}^+ c_{i-\sigma} \rangle = \beta_{1\sigma} \gamma_\sigma, \quad (D.17)$$

$$\mu_\sigma = \langle S_i^{-\sigma} S_i^\sigma n_{i\sigma} \rangle = \beta_{2\sigma} \Delta_\sigma - \beta_{2\sigma} \langle n_\sigma \rangle \langle S^z \rangle + \langle S^{-\sigma} S^\sigma \rangle \langle n_\sigma \rangle. \quad (D.18)$$

Durch Abgleich mit dem ersten und zweiten Spektralmoment gelingt uns die Bestimmung der in den Ansätzen (C.25-C.28) enthaltenen Koeffizienten $\alpha_{i\sigma}$ und $\beta_{i\sigma}$.

$$\alpha_{1\sigma} = 0 \quad (D.19)$$

$$\beta_{1\sigma} = \frac{M_{ij\sigma}^{(1)}(F^{(1)})}{M_{ij\sigma}^{(1)}(F)} \quad (D.20)$$

$$\alpha_{2\sigma} = 0 \quad (D.21)$$

$$\beta_{2\sigma} = \frac{\langle S_i^{-\sigma} S_i^\sigma S_i^z \rangle - \langle S_i^{-\sigma} S_i^\sigma \rangle \langle S_i^z \rangle + 2\hbar\eta_\sigma}{\langle (S_i^z)^2 \rangle - \langle S_i^z \rangle^2 - \hbar\gamma_\sigma} \quad (D.22)$$

$$\alpha_{3\sigma} = -\gamma_\sigma \quad (D.23)$$

$$\beta_{3\sigma} = \langle n_\sigma \rangle \quad (D.24)$$

$$\alpha_{4\sigma} = \Delta_{-\sigma} \quad (D.25)$$

$$\beta_{4\sigma} = \frac{\hbar^2 S(S+1) \langle n_{-\sigma} \rangle - \mu_{-\sigma} + \Delta_{-\sigma} (z_\sigma \hbar - \langle S_i^z \rangle) - z_\sigma \eta_\sigma}{\langle (S_i^z)^2 \rangle - \langle S_i^z \rangle^2 - \hbar\gamma_\sigma} \quad (D.26)$$

Anhang E

Symmetrierelationen von $D_{\mathbf{q}}^{\sigma\sigma'}$

Für die Funktion

$$D_{\mathbf{q}}^{\sigma\sigma'} = -\frac{1}{\pi} \text{Im} \int_{-\infty}^{+\infty} dE f_{-}(E) \frac{1}{N} \sum_{\mathbf{k}} A_{\mathbf{k},\mathbf{k}+\mathbf{q}}^{\sigma\sigma'}(E) \quad (\text{E.1})$$

mit

$$A_{\mathbf{k},\mathbf{k}+\mathbf{q}}^{\sigma\sigma'}(E) = G_{\mathbf{k}}^{(0)}(E) G_{\mathbf{k}+\mathbf{q}\sigma}(E) + G_{\mathbf{k}+\mathbf{q}}^{(0)}(E) G_{\mathbf{k}\sigma'}(E) \quad (\text{E.2})$$

gelten die Symmetriebeziehungen:

$$D_{\mathbf{q}}^{\uparrow\downarrow} + D_{\mathbf{q}}^{\downarrow\uparrow} = D_{\mathbf{q}}^{\uparrow\uparrow} + D_{\mathbf{q}}^{\downarrow\downarrow}. \quad (\text{E.3})$$

$$D_{\mathbf{q}}^{\uparrow\downarrow} = D_{\mathbf{q}}^{\downarrow\uparrow} \quad (\text{E.4})$$

Zum Beweis gehen wir von der Gleichung (E.2) aus:

$$\begin{aligned} A_{\mathbf{k},\mathbf{k}+\mathbf{q}}^{\uparrow\downarrow}(E) + A_{\mathbf{k},\mathbf{k}+\mathbf{q}}^{\downarrow\uparrow}(E) &= G_{\mathbf{k}}^{(0)}(E) G_{\mathbf{k}+\mathbf{q}\uparrow}(E) + G_{\mathbf{k}+\mathbf{q}}^{(0)}(E) G_{\mathbf{k}\downarrow}(E) \\ &+ G_{\mathbf{k}}^{(0)}(E) G_{\mathbf{k}+\mathbf{q}\downarrow}(E) + G_{\mathbf{k}+\mathbf{q}}^{(0)}(E) G_{\mathbf{k}\uparrow}(E). \end{aligned} \quad (\text{E.5})$$

Der erste und der vierte Summand in (E.5) lassen sich zu $A_{\mathbf{k},\mathbf{k}+\mathbf{q}}^{\uparrow\uparrow}(E)$ zusammenfassen. Die restlichen Terme können mit $A_{\mathbf{k},\mathbf{k}+\mathbf{q}}^{\downarrow\downarrow}(E)$ identifiziert werden. Aus dieser Umordnung der einzelnen Beiträge in (E.5) folgt nun, daß

$$A_{\mathbf{k},\mathbf{k}+\mathbf{q}}^{\uparrow\downarrow}(E) + A_{\mathbf{k},\mathbf{k}+\mathbf{q}}^{\downarrow\uparrow}(E) = A_{\mathbf{k},\mathbf{k}+\mathbf{q}}^{\uparrow\uparrow}(E) + A_{\mathbf{k},\mathbf{k}+\mathbf{q}}^{\downarrow\downarrow}(E) \quad (\text{E.6})$$

ist. Somit folgt aus (E.1) unmittelbar Gleichung (E.3).

Für den Beweis von (E.4) wollen wir zunächst die über die Wellenzahlvektoren

aufsummierte Definition (E.2) umformen.

$$\begin{aligned}
& \frac{1}{N} \sum_{\mathbf{k}} A_{\mathbf{k}, \mathbf{k}+\mathbf{q}}^{\uparrow\downarrow}(E) \\
&= \frac{1}{N} \sum_{\mathbf{k}} \left(G_{\mathbf{k}}^{(0)}(E) G_{\mathbf{k}+\mathbf{q}\uparrow}(E) + G_{\mathbf{k}+\mathbf{q}}^{(0)}(E) G_{\mathbf{k}\downarrow}(E) \right) \\
&\stackrel{\mathbf{k} \rightarrow \mathbf{k}-\mathbf{q}}{=} \frac{1}{N} \sum_{\mathbf{k}} \left(G_{\mathbf{k}-\mathbf{q}}^{(0)}(E) G_{\mathbf{k}\uparrow}(E) + G_{\mathbf{k}}^{(0)}(E) G_{\mathbf{k}-\mathbf{q}\downarrow}(E) \right) \\
&\stackrel{\mathbf{k} \rightarrow -\mathbf{k}}{=} \frac{1}{N} \sum_{\mathbf{k}} \left(G_{-(\mathbf{k}+\mathbf{q})}^{(0)}(E) G_{-\mathbf{k}\uparrow}(E) + G_{-\mathbf{k}}^{(0)}(E) G_{-(\mathbf{k}+\mathbf{q})\downarrow}(E) \right)
\end{aligned} \tag{E.7}$$

Aus der Symmetrierelation $\varepsilon(\mathbf{k}) = \varepsilon(-\mathbf{k})$ für die Bloch-Energie und $M_{\mathbf{k}\sigma}(E) = M_{-\mathbf{k}\sigma}(E)$ ergibt sich $G_{\mathbf{k}\sigma}(E) = G_{-\mathbf{k}\sigma}(E)$, und damit

$$\begin{aligned}
& \frac{1}{N} \sum_{\mathbf{k}} A_{\mathbf{k}, \mathbf{k}+\mathbf{q}}^{\uparrow\downarrow}(E) \\
&= \frac{1}{N} \sum_{\mathbf{k}} \left(G_{\mathbf{k}}^{(0)}(E) G_{\mathbf{k}+\mathbf{q}\downarrow}(E) + G_{\mathbf{k}+\mathbf{q}}^{(0)}(E) G_{\mathbf{k}\uparrow}(E) \right) \\
&= \frac{1}{N} \sum_{\mathbf{k}} A_{\mathbf{k}, \mathbf{k}+\mathbf{q}}^{\downarrow\uparrow}(E).
\end{aligned} \tag{E.8}$$

Mit (E.2) folgt damit $D_{\mathbf{q}}^{\uparrow\downarrow} = D_{\mathbf{q}}^{\downarrow\uparrow}$. Insgesamt läßt sich aus (E.3) und (E.4) die nützliche Beziehung herleiten:

$$2D_{\mathbf{q}}^{\uparrow\downarrow} = 2D_{\mathbf{q}}^{\downarrow\uparrow} = D_{\mathbf{q}}^{\uparrow\uparrow} + D_{\mathbf{q}}^{\downarrow\downarrow}. \tag{E.9}$$

Anhang F

Ferromagnetische Sättigung im Mehr-Band-Kondo-Gitter Modell

Im Grenzfall der ferromagnetischen Sättigung und der leeren Bänder lässt sich die Ein-Elektronen-Green-Funktion auch für das Mehr-Band-Kondo-Gitter-Modell exakt berechnen. Wie im Ein-Band-Fall stellen wir zunächst die Bewegungsgleichung der Ein-Elektronen-Green-Funktion auf.

$$\sum_{km''} \left(E \delta_{ik}^{mm''} - T_{ik}^{mm''} \right) G_{kj\sigma}^{m''m'}(E) = \hbar \delta_{ij}^{mm'} - \frac{J}{2\hbar} \left\{ z_{\sigma} \Gamma_{ij\sigma}^{mm'}(E) + F_{ij\sigma}^{mm'}(E) \right\} \quad (\text{F.1})$$

Analog zu den Gleichungen (4.28) und (4.29) können wir auch hier folgende exakte Beziehungen angeben.

$$\Gamma_{ij\sigma}^{mm'}(E) = \hbar S G_{ij\sigma}^{mm'}(E), \quad (\text{F.2})$$

$$F_{ij\uparrow}^{mm'}(E) = 0. \quad (\text{F.3})$$

Mit (F.2) ergibt sich für die Bewegungsgleichung (F.1) der Ein-Elektronen-Green-Funktion

$$\sum_{km''} \left(\left(E + \frac{1}{2} J S \right) \delta_{ik}^{mm''} - T_{ik}^{mm''} \right) G_{kj\sigma}^{m''m'}(E) = \hbar \delta_{ij}^{mm'} - \frac{J}{2\hbar} F_{ij\sigma}^{mm'}(E). \quad (\text{F.4})$$

In der Bewegungsgleichung der *Spinflipfunktion* $F_{ilj\downarrow}^{mm'}(E)$ haben wir analog zu dem Ein-Band-Fall (Anhang A) alle höheren Greensche Funktionen exakt durch die Greenschen Funktionen $G_{ij\downarrow}^{mm'}(E)$ und $F_{ilj\downarrow}^{mm'}(E)$ ausgedrückt.

$$\sum_{lm''} \left(\left(E + \frac{J}{2} S \right) \delta_{kl}^{mm''} - T_{kl}^{mm''} \right) F_{ilj\downarrow}^{m''m'}(E) = \frac{J}{2\hbar} \delta_{ik} F_{ikj\downarrow}^{mm'} - J \hbar S \delta_{ik} G_{kj\downarrow}^{mm'}(E) \quad (\text{F.5})$$

Durch Fouriertransformation und Übergang zur Matrixschreibweise erhalten wir aus Gleichung (F.5) eine Matrixgleichung für die *Spinflipfunktion* $\mathbf{F}_{\mathbf{k}\downarrow}(E)$:

$$\left(\mathbb{1} - \frac{1}{2\hbar}J\mathbf{B}(E)\right)\mathbf{F}_{\mathbf{k}\downarrow}(E) = -J\hbar S\mathbf{B}(E)\mathbf{G}_{\mathbf{k}\downarrow}(E). \quad (\text{F.6})$$

Hierbei haben wir die energieabhängige Matrixfunktion $\mathbf{B}(E)$ eingeführt:

$$\mathbf{B}(E) \equiv \mathbf{B}_{\mathbf{k}}(E) = \frac{\hbar}{N} \sum_{\mathbf{q}} \left((E + \frac{1}{2}JS)\mathbb{1} - \mathbf{T}_{\mathbf{k}-\mathbf{q}} \right)^{-1}. \quad (\text{F.7})$$

Die *Spinflipfunktion* können wir durch Matrixinversion aus (F.6) bestimmen:

$$\mathbf{F}_{\mathbf{k}\downarrow}(E) = -JS \left(\mathbb{1} - \frac{J}{2\hbar}\mathbf{B}(E) \right)^{-1} \cdot \mathbf{B}(E) \cdot \mathbf{G}_{\mathbf{k}\downarrow}(E). \quad (\text{F.8})$$

Mit dieser Lösung läßt sich nun die *Spinflipfunktion* in der Bewegungsgleichung der Ein-Elektronen-Green-Funktion eliminieren.

$$(E\mathbb{1} - \mathbf{T}_{\mathbf{k}})\mathbf{G}_{\mathbf{k}\downarrow}(E) = \mathbb{1}\hbar + \frac{1}{2}JS\mathbf{G}_{\mathbf{k}\downarrow}(E) - \frac{1}{2\hbar}J\mathbf{F}_{\mathbf{k}\downarrow}(E) \quad (\text{F.9})$$

Daraus ergibt sich nach einer kurzen Rechnung die Selbstenergie für $\sigma = \downarrow$:

$$\mathbf{M}_{\mathbf{k}\downarrow}(E) = \frac{1}{2}JS\mathbb{1} - \frac{J^2}{2\hbar}S\mathbb{1} \cdot \left(\mathbb{1} - \frac{J}{2\hbar}\mathbf{B}(E) \right)^{-1} \cdot \mathbf{B}(E). \quad (\text{F.10})$$

Nun läßt sich mit $\mathbf{M}_{\mathbf{k}\uparrow}(E) = -\frac{1}{2}JS\mathbb{1}$ die Selbstenergie für den *ferromagnetisch gesättigten Halbleiter* für das Mehr-Band-Kondo-Gitter Modell wie folgt angeben:

$$\mathbf{M}_{\mathbf{k}\sigma}(E) = -\frac{1}{2}JSz_{\sigma}\mathbb{1} - \frac{J^2S}{2\hbar}\delta_{\sigma\downarrow} \cdot \left(\mathbb{1} - \frac{J}{2\hbar}\mathbf{B}(E) \right)^{-1} \cdot \mathbf{B}(E). \quad (\text{F.11})$$

Literaturverzeichnis

- [1] MEYER, D. ; SANTOS, C. ; NOLTING, W.: In: *J. Phys. C* 13 (2001), S. 2531
- [2] NOLTING, W. ; MÜLLER, W. ; SANTOS, C.: In: *Journal of Physics A* 36 (2003), S. 9275
- [3] NOLTING, W. ; MÜLLER, W. ; SANTOS, C. ; SINJUKOW, P.: Local Moment Systems: Magnetism and Electronic Correlations. In: *Highlights in Condensed Matter Physics* Bd. 695. 2003, S. 196
- [4] NOLTING, W. ; REX, S. ; JAYA, S. M.: In: *J. Phys. C* 9 (1997), S. 1301
- [5] SANTOS, C. ; NOLTING, W.: In: *Phys. Rev. B* 65 (2002), S. 144419
- [6] SANTOS, C. ; NOLTING, W.: In: *Phys. Rev. B* 66 (2002), S. 019901(E)
- [7] PERRING, T. G. ; AEPPLI, G. ; HAYDEN, S. M. ; CARTER, S. A. ; REMEIKKA, J. P. ; CHEONG, S-W: In: *Phys. Rev. Lett.* 77 (1996), S. 711
- [8] HWANG, H. Y. ; DAI, P. ; CHEONG, S-W. ; AEPPLI, G. ; TENNANT, D. A. ; MOOK, H. A.: In: *Phys. Rev. Lett.* 80 (1998), S. 1316
- [9] SANTOS, C. ; NOLTING, W. ; EYERT, V.: In: *Phys. Rev. B* 69 (2004), S. 214412
- [10] NIGH, H. E. ; LEGVOLD, S. ; SPEDDING, F. H.: In: *Phys. Rev.* 132 (1963), S. 1092
- [11] KIM, B. ; ANDRES, A. B. ; ERSKINE, J. L. ; KIM, K. J. ; HARMON, B. N.: In: *Phys. Rev. Lett.* 68 (1992), S. 1931
- [12] BAIBICH, M. N. ; BROTO, J. M. ; FERT, A. ; DAU, F. N. V. ; PETROFF, F. ; EITENNE, P. ; CREUZET, G. ; FRIEDERICH, A. ; CHAZELAS, J.: In: *Phys. Rev. Lett.* 61 (1988), S. 2472

- [13] BINASCH, G. ; GRÜNBERG, P. ; SAURENBACH, F. ; ZINN, W.: In: *Phys. Rev. B* 39 (1989), S. 4828
- [14] WOLF, S.A. ; AWSCHALOM, D. D. ; BUHRMAN, R. A. ; DAUGHTON, J. M. ; VON MOLNÁR, S. ; ROUKES, M. L. ; CHTCHELKANOVA, A. Y. ; TREGER, D. M.: In: *Science* 294 (2001), S. 1488
- [15] AWSCHALOM, D. D. ; LOSS, D. ; SMARTH, N.: *Semiconductor Spintronics and Quantum Computations*. Springer, Berlin, 2002
- [16] ŽUTIC, I. ; FABIAN, J. ; SARMA, S. D.: In: *Rev. Mod. Phys.* 76 (2004), S. 323
- [17] KOSHIHARA, S. ; OIWA, A. ; HIRASAWA, M. ; KATSUMOTO, S. ; IYE, Y. ; URANO, C. ; TAKAGI, H. ; MUNEKATA, H.: In: *Phys. Rev. Lett.* 78 (1997), S. 4617
- [18] OHNO, H. ; CHIBA, D. ; MATSUKURA, F. ; OMIYA, T. ; ABE, E. ; DIETL, T. ; OHNO, Y. ; OHTANI, K.: In: *Nature* 408 (2000), S. 944
- [19] RUDERMANN, A. A. ; KITTEL, C.: In: *Phys. Rev.* 96 (1954), S. 99
- [20] KASUYA, T.: In: *Prog. Theor. Phys.* 16 (1956), S. 45
- [21] YOSIDA, K.: In: *Phys. Rev.* 106 (1957), S. 893
- [22] ZENER, C.: In: *Phys. Rev.* 81 (1951), S. 440
- [23] ANDERSON, P. W. ; HASEGAWA, H.: In: *Phys. Rev.* 100 (1955), S. 675
- [24] KONDO, J.: In: *Prog. Theor. Phys.* 32 (1964), S. 37
- [25] NAGAEV, E. L.: In: *phys. stat. sol. (b)*. 65 (1974), S. 11
- [26] NOLTING, W.: In: *phys. stat. sol. (b)*. 96 (1979), S. 11
- [27] BUSCH, G. ; JUNOD, P. ; WACHTER, P.: In: *Phys. Lett.* 12 (1964), S. 11
- [28] RYS, F. ; HELMAN, J. S. ; BALTENSPERGER, W.: In: *Phys. Konden. Mater.* 6 (1967), S. 105
- [29] SINKKONEN, J.: In: *Phys. Rev. B* 19 (1979), S. 6407
- [30] BATLOGG, B. ; E. KALDIS, A. S. ; WACHTER, P.: In: *Phys. Rev. B* 12 (1975), S. 3940
- [31] HEISENBERG, W.: In: *Z. Phys.* 38 (1926), S. 441

- [32] MATTIS, D. C.: *The Theory of Magnetism*. Harper Row, New York, 1965
- [33] DYSON, F. J.: In: *Phys. Rev.* 102 (1956), S. 1244
- [34] DYSON, F. J.: In: *Phys. Rev.* 102 (1956), S. 1217
- [35] HUBBARD, J.: In: *Phys. Lett.* 77 (1959), S. 7
- [36] HUBBARD, J.: In: *Proc. R. Soc. London A* 276 (1963), S. 238
- [37] VONSOVSKII, S. V. ; IZYUMOV, Yu. A.: In: *Sov. Phys. Usp.* 5 (1963), S. 547
- [38] ZENER, C.: In: *Phys. Rev.* 82 (1951), S. 403
- [39] DE GENNES, P.-G.: In: *Phys. Rev.* 118 (1960), S. 141
- [40] G. H. JONKER, J. H. V. S.: In: *Physica* 16 (1950), S. 337
- [41] J. H. VAN SANTEN, G. H. J.: In: *Physica* 16 (1950), S. 599
- [42] ZUBAREV, D. N.: In: *Sov. Phys. Usp.* 3 (1960), S. 320
- [43] NOLTING, W.: *Quantentheorie des Magnetismus*,. Bd. 2. (Teubner, Stuttgart), 1986
- [44] NOLTING, W.: *Grundkurs Theoretische Physik, Viel-Teilchen-Theorie*. Bd. 7. (Plenum Press, Braunschweig), 1997
- [45] GASSER, W. ; HEINER, E. ; ELK, K.: *Greensche Funktionen in Festkörper- und Vielteilchenphysik*. WILEY-VCH Verlag Berlin GmbH, 2001
- [46] AUSLENDER, M. I. ; KATSNELSON, M. I. ; IRKIN, V. Y.: In: *Physica B* 119 (1983), S. 309
- [47] MARVAKOV, D. I. ; KUZEMSKY, A. L. ; VLAHOV, J. P.: In: *Physica B* 138 (1986), S. 129
- [48] SHASTRY, B. S. ; MATTIS, D. C.: In: *Phys. Rev. B* 24 (1981), S. 5340
- [49] ALLAN, S. R. ; EDWARDS, D. M.: In: *J. Phys. C* 15 (1982), S. 2151
- [50] NOLTING, W. ; DUBIL, U. ; MATLAK, M.: In: *J. Phys. C* 18 (1985), S. 3687
- [51] NOLTING, W. ; DUBIL, U.: In: *phys. stat. sol. (b)*. 130 (1985), S. 561

- [52] NOLTING, W.: In: *J. Phys. C* 11 (1978), S. 1427
- [53] NOLTING, W. ; MATLAK: In: *phys. stat. sol. (b)*. 123 (1984), S. 155
- [54] CALLEN, H. B.: In: *Phys. Rev.* 130 (1963), S. 890
- [55] ERUKHIMOV, M. S. ; OVCHINNIKOV, S. G.: In: *phys. stat. sol. (b)*. 123 (1984), S. 105
- [56] TSUNETSUGU, H. ; SIGRIST, M. ; UEDA, K.: In: *Rev. Mod. Phys.* 69 (1997), S. 809
- [57] NOLTING, W. ; JAYA, S. M. ; REX, S.: In: *Phys. Rev. B* 54 (1996), S. 14455
- [58] NOLTING, W. ; DAMBECK, T. ; BORSTEL, G.: 90 (1993), S. 413
- [59] REX, S. ; EYERT, V. ; NOLTING, W.: In: *J. Magn. Magn. Mat.* 192 (1999), S. 529
- [60] SCHILLER, R. ; NOLTING, W.: In: *Solid State Commun.* 118 (2001), S. 173
- [61] SCHILLER, R. ; NOLTING, W.: In: *Phys. Rev. Lett.* 86 (2001), S. 3847
- [62] BOGLIUBOV, N. N. ; TYABLIKOW, S.V.: In: *Dok. Akad. Nauk. USSR* 126 (1959), S. 53
- [63] HENNIG, J., Humboldt-Universität zu Berlin, Diplomarbeit, 2005
- [64] YUNOKI, S. ; HU, J. ; MALVEZZI, A. L. ; MOREO, A. ; FURUKAWA, N. ; DAGOTTO, E.: In: *Phys. Rev. Lett.* 80 (1998), S. 845
- [65] MOREO, A. ; YUNOKI, S. ; DAGOTTO, E.: In: *Science* 238 (1999), S. 2034
- [66] CHATTOPADHYAY, A. ; MILLIS, A. J. ; SARMA, S. D.: In: *Phys. Rev. B* 64 (2001), S. 012416
- [67] VOGT, M. ; SANTOS, C. ; NOLTING, W.: In: *phys. stat. sol. (b)*. 223 (2001), S. 679
- [68] KURZ, P. ; BIHLMAYER, G. ; BLÜGEL, S.: In: *J. Phys. C* 14 (2002), S. 6353
- [69] FURUKAWA, N.: *Physics of Manganites*. Plenum, New York, 1999. – 1 S
- [70] MILLIS, A. J. ; LITTLEWOOD, P. B. ; SHRAIMAN, B. I.: In: *Phys. Rev. Lett.* 74 (1995), S. 5144

- [71] HELD, K. ; VOLLHARDT, D.: In: *Phys. Rev. Lett.* 84 (2000), S. 5168
- [72] WANG, X.: In: *Phys. Rev. B* 57 (1998), S. 7427
- [73] KOGAN, E. ; AUSLENDER, M. ; DGANI, E.: In: *cond-mat/0211354* (2002)
- [74] KOGAN, E. ; AUSLENDER, M.: In: *Phys. Rev. B* 67 (2003), S. 132410
- [75] CHATTOPADHYAY, A. ; MILLIS, A. J.: In: *Phys. Rev. B* 64 (2001), S. 024424
- [76] LETFULOV, B. M.: In: *Europ. Phys. J. B* 14 (1999), S. 19
- [77] NOLTING, W. ; SANTOS, C.: In: *phys. stat. sol. (b)*. 236 (2003), S. 272
- [78] AUSLENDER, M. ; KOGAN, E.: In: *Physica A* 302 (2002), S. 345
- [79] AUSLENDER, M. ; KOGAN, E.: In: *Phys. Rev. B* 65 (2002), S. 012408
- [80] FERNANDEZ-BACA, J. A. ; DAI, P. ; HWANG, H. Y. ; KLOC, C. ; CHEONG, S-W.: In: *Phys. Rev. Lett.* 80 (1998), S. 4012
- [81] KHALIULLIN, G. ; KILIAN, R.: In: *Phys. Rev. B* 61 (2000), S. 3494
- [82] MULHOLLAN, G. A. ; GARRISON, K. ; ERSKINE, J. L.: In: *Phys. Rev. Lett.* 69 (1992), S. 3240
- [83] FEDOROV, A. V. ; STARKE, K. ; KAINDL, G.: In: *Phys. Rev. B* 50 (1994), S. 2739
- [84] LANG, J. K. ; BAER, Y. ; COX, P. A.: In: *J. Phys. F* 11 (1981), S. 121
- [85] BORN, M. ; OPPENHEIMER, R.: In: *Annalen der Physik* 84 (1927), S. 457
- [86] HOHENBERG, P. ; KOHN, W.: In: *Phys. Rev.* 136 (1964), S. B864
- [87] KOHN, W. ; SHAM, L. J.: In: *Phys. Rev.* 140 (1965), S. A1133
- [88] DREIZLER, R. M. ; GROSS, E. K. U.: *Density Functional Theory*. Springer-Verlag Berlin Heidelberg New York, 1990
- [89] PERDEW, J. P. ; KURTH, S.: *Density Functionals for Non-relativistic Coulomb Systems in the New Century*. In: *A Primer in Density Functional Theory*. Springer-Verlag Berlin Heidelberg New York, 2003, S. 1
- [90] CEPERLEY, D. M. ; ALDER, B. J.: In: *Phys. Rev. Lett.* 45 (1980), S. 566

- [91] PERDEW, J. P. ; ZUNGER, A.: In: *Phys. Rev. Lett.* 23 (1981), S. 5048
- [92] BARTH, U. ; HEDIN, L.: In: *J. Phys. C* 5 (1972), S. 1629
- [93] GUNNARSSON, O. ; LUNDQVIST, B. I.: In: *Phys. Rev. B* 13 (1976), S. 4274
- [94] ANISIMOV, V. I. ; ARYASETIAWAN, F. ; LICHTENSTEIN, A. I.: In: *J. Phys. C* 9 (1996), S. 767
- [95] PERDEW, J. P. ; BURKE, K. ; ERNZERHOF, M.: In: *Phys. Rev. Lett.* 77 (1996), S. 3865
- [96] SLATER, J. C.: In: *Phys. Rev.* 51 (1937), S. 846
- [97] SLATER, J. C.: *Quantum Theory of Molecules and Solids*. Bd. 2. McGraw-Hill: New York, 1965
- [98] LOUCKS, T.: *Augmented Plane Wave Method*. Benjamin: New York, 1967
- [99] ANDERSEN, O. K.: In: *Solid State Commun.* 13 (1973), S. 133
- [100] ANDERSEN, O. K.: In: *Phys. Rev. B* 12 (1975), S. 3060
- [101] WILLIAMS, A. R. ; KÜBLER, J. ; GELATT, C. D.: In: *Phys. Rev. B* 19 (1979), S. 6094
- [102] EYERT, V.: In: *Int. J. Quant. Chem.* 77 (2000), S. 1007
- [103] HEINEMANN, M. ; TEMMERMAN, W. M.: In: *Phys. Rev. B* 49 (1994), S. 4348
- [104] ERIKSSON, O. ; AHUJA, R. ; ORMECI, A. ; TRYGG, J. ; HJORTSTAM, O. ; SÖDERLIND, P. ; JOHANSSON, B. ; WILLS, J. M.: In: *Phys. Rev. B* 52 (1995), S. 4420
- [105] SHICK, A. B. ; LICHTENSTEIN, A. I. ; PICKETT, W. E.: In: *Phys. Rev. B* 60 (1999), S. 10763
- [106] NOLTING, W. ; BORGIEL, W. ; DOSE, V. ; FAUSTER, Th.: In: *Phys. Rev. B* 40 (1989), S. 5015
- [107] SCHILLER, R. ; MÜLLER, W. ; NOLTING, W.: In: *Phys. Rev. B* 64 (2001), S. 134409
- [108] SCHILLER, R. ; NOLTING, W.: In: *Phys. Rev. B* 60 (1999), S. 462

- [109] JANAK, J. F. ; WILLIAMS, A. R.: In: *Phys. Rev. B* 14 (1976), S. 4199
- [110] WESCHKE, E. ; SCHÜSSLER-LANGEHEINE, C. ; MEIER, R. ; FEDOROV, A. V. ; STARKE, K. ; HÜBINGER, F. ; KAINDL, G.: In: *Phys. Rev. Lett.* 77 (1996), S. 3415
- [111] DONATH, M. (Hrsg.) ; DOWBEN, P. A. (Hrsg.) ; NOLTING, W. (Hrsg.): *Magnetism and Electronic Correlations in Local-Moment Systems; Rare-Earth Elements and Compounds.* World Scientific, Singapore, 1998
- [112] MAITI, K. ; MALAGOLI, M. C. ; DALLMEYER, A. ; CARBONE, C.: In: *Phys. Rev. Lett.* 88 (2002), S. 167205
- [113] LI, D. ; ZHANG, J. ; DOWBEN, P. A. ; ONELLION, M.: In: *Phys. Rev. B* 45 (1992), S. 7272
- [114] DONATH, M. ; GUBANKA, B. ; PASSEK, F.: In: *Phys. Rev. Lett.* 77 (1996), S. 5138
- [115] KHMELEVSKYI, S. ; TUREK, I. ; MOHN, P.: In: *Phys. Rev. B* 70 (2004), S. 132401
- [116] SCHÜSSLER-LANGEHEINE, C.: *Magnetic Properties of Thin Films of Heavy Lanthanide Metals Studied by Magnetic X-Ray Diffraction and High-Resolution Photoemission*, Diss., 1999
- [117] SCHÜSSLER-LANGEHEINE, C.. – private Mitteilung

Veröffentlichungen

C. Santos, V. Eyert und W. Nolting. *Ferromagnetism and temperature-dependent electronic structure of hcp gadolinium*. Physical Review B 69, 214412 (2004).

C. Santos, V. Eyert, and W. Nolting. *Ferromagnetism and temperature-dependent electronic structure of HCP gadolinium*. J. Magn. Magn. Mater. 272-276, E371 (2004)

T. Hickel, C. Santos und W. Nolting. *The projection-operator approach to the Kondo-lattice model*. J. Magn. Magn. Mater. 272, 263 (2004).

W. Nolting, W. Müller, C. Santos und P. Sinjukow. *Local moment systems: magnetism and electronic correlations*. AIP Conference Proceedings 695, 196 (2003).

W. Nolting und C. Santos. *Ferromagnetic Kondo-Lattice Model: Application to thin ferromagnetic and semiconducting local moment films*. phys. stat. sol. (b) 236, 272 (2003).

J. Kienert, C. Santos und W. Nolting. *The correlated Kondo-lattice model*. phys. stat. sol. (b) 236, 515 (2003)

W. Nolting, W. Müller und C. Santos. *Ferromagnetic Kondo-Lattice Model*. Journal of Physics A 36, 9275 (2003)

W. Nolting und C. Santos. *Temperature-dependent electronic structure and magnetic stability of thin ferromagnetic films*. Physica B 321, 189-197 (2002).

C. Santos and W. Nolting. *Erratum: Ferromagnetism in the Kondo-lattice model [Phys. Rev. B 65, 144419 (2002)]*. Phys. Rev. B 66, 019901(E) (2002)

C. Santos und W. Nolting. *Ferromagnetism in the Kondo-lattice model*.

Phys. Rev. B 65, 144419 (2002).

D. Meyer, C. Santos und W. Nolting. *Quantum effects in the quasiparticle structure of the ferromagnetic Kondo lattice model*. J. Phys.: Condens. Matter 13, 2531 (2001).

M. Vogt, C. Santos und W. Nolting. *Magnons in the ferromagnetic Kondo lattice model*. phys. stat. sol. (b) 223, 679 (2001).

D. Suisky, W. Heimbrodt, C. Santos, F. Neugebauer und M. Happ. *Anisotropic Zeeman splitting in semimagnetic quantum-well structures*. Phys. Rev. B 58, 3969 (1998)

C. Santos, D. Suisky, F. Neugebauer, W. Heimbrodt, R. Knoch, J. Röseler und M. Hartmann. *Magneto-optical anisotropy in semimagnetic quantum wells and superlattices*. Proceedings of the 22nd International Conference on the Physics of Semiconductors, Vancouver (1994).

C. Santos, D. Suisky, P. Enders, F. Neugebauer, M. Hartmann, J. Röseler, and W. Heimbrodt. *Magneto-optical anisotropy in quantum wells and superlattices: The interplay of strain and magnetic fields*. Proceedings of the European Workshop on II-VI Semiconductors and International Workshop on Semimagnetic (diluted magnetic) Semiconductors (1994).

Berlin, 8. April 2005

Danksagung

An dieser Stelle möchte ich die Gelegenheit nutzen, allen zu danken, die mir bei der Anfertigung dieser Arbeit zur Seite gestanden haben. Insbesondere bedanke ich mich bei

Prof. Dr. W. Nolting für die umfassende und intensive fachliche Betreuung;

Priv.-Doz. Dr. habil. V. Eyert für die enge, konstruktive Zusammenarbeit auf dem Gebiet der Bandstrukturrechnung;

T. Hickel für seine unermüdliche Bereitschaft über die Projektionsoperatormethode und das Kondo-Gitter-Modell zu diskutieren;

Frau M. Götsch für die Hilfe bei allen nichtphysikalischen Fragestellungen;

J. Hennig und R. Mathes für das Korrekturlesen und die daraus resultierenden Anregungen;

und allen übrigen Mitgliedern der Arbeitsgruppe Festkörpertheorie.

Schließlich möchte ich mich bei Herrn Prof. M. Hartmann, Dr. J. Röseler und nicht zuletzt bei meiner Frau Kirstin und meiner Tochter Isabell für deren Unterstützung außerhalb der fachlichen Welt bedanken.

Selbständigkeitserklärung

Hiermit erkläre ich, die vorliegende Arbeit selbständig und ohne Verwendung unerlaubter Hilfsmittel angefertigt zu haben.

Berlin, 8. April 2005